



**CONTRIBUTION A L'ETUDE DE LA  
TRANSMISSION DES ULTRASONS A UNE  
INTERFACE SOLIDE - GAZ - LIQUIDE. Application  
au contrôle non destructif des réacteurs de quatrième  
génération refroidis par du sodium liquide**

Kevin Paumel

► **To cite this version:**

Kevin Paumel. CONTRIBUTION A L'ETUDE DE LA TRANSMISSION DES ULTRASONS A UNE INTERFACE SOLIDE - GAZ - LIQUIDE. Application au contrôle non destructif des réacteurs de quatrième génération refroidis par du sodium liquide. Acoustique [physics.class-ph]. Université de la Méditerranée - Aix-Marseille II, 2008. Français. NNT : . tel-01053699

**HAL Id: tel-01053699**

**<https://theses.hal.science/tel-01053699>**

Submitted on 1 Aug 2014

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

**UNIVERSITE DE LA MEDITERRANEE  
AIX-MARSEILLE II**

**ECOLE DOCTORALE DE PHYSIQUE, MODELISATION ET SCIENCES  
POUR L'INGENIEUR**

**Doctorat**

*Spécialité : Mécanique des Solides*

**Kevin PAUMEL**

---

**CONTRIBUTION A L'ETUDE DE LA TRANSMISSION DES ULTRASONS  
A UNE INTERFACE SOLIDE – GAZ – LIQUIDE.**

**Application au contrôle non destructif des réacteurs de quatrième génération  
refroidis par du sodium liquide**

---

***Directeur de thèse : Gilles CORNELOUP***

Soutenue le 28 octobre 2008

**Jury :**

Michel AUTRIC	Professeur des Universités	IUSTI Marseille	Examineur
François BAQUÉ	Ingénieur chercheur	CEA Cadarache	Invité
Jean-Luc BERTON	Ingénieur chercheur	CEA Cadarache	Invité
Elisabeth CHARLAIX	Professeur des Universités	Laboratoire PMCN Lyon	Rapporteur
Dominique CHATAIN	Directeur de Recherche CNRS	CINaM Marseille	Présidente
Gilles CORNELOUP	Professeur des Universités	LCND Aix-en-Provence	Directeur
Yves JAYET	Professeur des Universités	MATEIS Lyon	Rapporteur
Joseph MOYSAN	Professeur des Universités	LCND Aix-en-Provence	Co-directeur



*A Deborah...*



## REMERCIEMENTS

*Les travaux présentés dans ce manuscrit ont été effectués au Laboratoire des Technologies et de Traitement du Sodium (LTTS) du Commissariat à l'Energie Atomique de Cadarache ainsi qu'au Laboratoire de Caractérisation Non Destructive (LCND) d'Aix-en-Provence.*

*J'exprime ma sincère reconnaissance à toutes les personnes, et je crains d'en oublier, qui ont contribué à ce travail de thèse et sans qui cette aventure n'aurait pu commencer ni s'achever.*

*Je remercie tout d'abord la direction du Département de Technologie Nucléaire et du Service des Technologies et Procédés Avancés, représentées respectivement par MM. Jean-Michel Morey et Jean-Claude Maguin, ainsi que Christian Latgé, chargé de mission scientifique, pour m'avoir permis de m'intégrer de façon simple et naturelle à Cadarache.*

*Ensuite, je tiens à remercier tout particulièrement Philippe Dardé, mon précédent chef de laboratoire au CEA (qui a été l'un des principaux instigateurs de ce sujet de thèse), et Olivier Gastaldi, mon nouveau chef, pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail, la confiance qu'ils m'ont témoignée, mais aussi pour leur implication déterminante dans mon avenir professionnel.*

*Je rends hommage à Gilles Corneloup pour son rôle central en tant que directeur de thèse et directeur du LCND. De par son investissement et son empathie, il a su trouver les mots pour me guider dans mon parcours et suggérer les solutions pour surmonter les obstacles.*

*Je souhaite témoigner ma profonde gratitude envers Joseph Moysan et François Baqué pour leur encadrement tout au long de ces trois années de thèse. François m'a fait découvrir le CEA et plus particulièrement cet univers passionnant autour du sodium. Son dynamisme, sa disponibilité et surtout sa gentillesse m'ont permis de progresser sereinement à ses côtés. Joseph, de par son expérience, m'a beaucoup appris, et notamment dans le vaste domaine des ultrasons. Il m'a accompagné par son dévouement et son soutien et m'a montré comment rebondir face aux difficultés grâce à ses perpétuels encouragements.*

*J'ai bénéficié aussi de l'appui inestimable de Jean-Luc Berton sur la plupart des sujets traités dans ce travail de thèse. Je ne lui serai jamais assez reconnaissant d'avoir partagé avec moi une partie de son immense savoir sans jamais compter son temps. Je reste admiratif de l'extrême finesse d'esprit et de la rigueur intellectuelle dont il a fait preuve pour apporter des réponses à mes nombreuses questions et pour la relecture de la majeure partie de mon manuscrit.*

*Toujours sur le plan scientifique et technique, je n'oublie pas de remercier Jean-Louis Courouau pour son apport sur les aspects chimiques liés au sodium, et Christian Lhuillier pour son aide sur le thème des ultrasons et le contexte technologique de la thèse.*

*Je remercie infiniment Dominique Chatain du CINA-M (CNRS) à Marseille pour son investissement précieux dans ce travail. Je lui suis notamment redevable d'idées nouvelles suggérées lors de fructueuses réunions et discussions. Je suis également très heureux et fier qu'elle ait présidé mon jury.*

*J'adresse de profonds remerciements à Jean-Pierre Fragassi et Michel Autric de l'IMFT à l'Institut de Mécanique de Marseille pour leur contribution à la genèse de l'expérience OMICA, mais également Michel Autric pour sa participation au jury.*

*Je remercie aussi Elisabeth Charlaix et Yves Jayet pour m'avoir fait l'honneur d'accepter d'être rapporteurs de mon travail de thèse et pour le temps qu'ils ont consacré à l'examen du manuscrit.*

*Je suis reconnaissant envers toutes les personnes avec lesquelles j'ai pu apprendre et partager des idées dans le cadre de l'installation Liquidus : Olivier Descombin, Marilou Schaeffer, Gwendal Blevin, André Skiara, Christian Dominjon, Pierre Trabuc, Jean-Marie Zuena, Laurent Brissonneau et Françoise Reyne; et du projet TECNA : Gilles Rodriguez, Michel Soucille, Gilles Gobillot, Pascal Autin, François Beauchamp.*

*Je remercie Joséphine Conti du CRMM de Mons en Belgique, Pierre-François Calmon du LAAS (CNRS) à Toulouse, et Sylvain David de l'IEF à Paris, pour leur participation à la réalisation et au traitement hydrophobe des échantillons en silicium utilisés dans mes expériences.*

*Je remercie amicalement mes collègues thésards : Matthieu C., Nicolas F., Vincent D. ; anciens thésards : Cédric, Matthieu R. ; post-docs et ATER : Aroune, Anthony, Eric ; pour tous ces bons moments vécus en leur compagnie. J'ai une pensée toute particulière pour Cédric avec lequel j'ai découvert les joies de la manip ultrasonore, ainsi qu'Aroune et Matthieu C. pour leur soutien et tous ces petits services qu'ils n'ont jamais hésité à me rendre. Merci aussi à Cécile Lesueur dont le travail de thèse et post-doctorat m'a servi de base de départ et sur lequel je me suis beaucoup appuyé.*

*J'adresse mes remerciements à chacun des membres du LTTS pour leur accueil chaleureux, leur sympathie et leurs conseils. Je pense à Bruno, Joël, Michel C., Nicolas G., Serge, Jannick, Nicolas L., Frédéric, Arnaud, Thierry, Olivier M., Sandrine mais aussi Pierre Charvet pour son aide concernant l'informatique.*

*Je tiens à remercier toute l'équipe du LCND avec laquelle j'ai pris beaucoup de plaisir à travailler. Un grand merci à Cécile pour sa bonne humeur, sa gentillesse et ses conseils, en particulier sur le traitement d'images. Merci à Marie-Aude pour sa disponibilité et ses mots rassurants. Merci à Vincent pour son enthousiasme et son aide très précieuse sur la conception du système mécanique d'OMICA. Merci à Jean-François pour ses explications, notamment sur les ultrasons et les incertitudes et pour son aide sur la cotation des pièces mécaniques. Merci à Ivan pour son humour et sa franchise, pour son apport à la conception du porte-échantillons-capteurs d'OMICA et pour m'avoir permis de solliciter Claude Joseph. Merci à Claude pour les multiples usinages de pièces qui ont été nécessaires pour mener à bien mes expériences. Merci enfin à François, à Naim et Philippe pour leur soutien informatique, ainsi qu'à Malkine et Nicole pour toutes ces choses qui font "tourner le labo".*

*Mes remerciements s'adressent à tous ceux qui ont participé de près ou de loin à ce travail, avec lesquels j'ai échangé sur un plan plus personnel, ou encore ceux avec lesquels j'ai simplement partagé des instants de convivialité.*

*Pour finir, je ne remercierai jamais assez mes proches. J'ai une pensée affectueuse et toute particulière envers mes parents pour leur soutien essentiel. Quant à Déborah, je ne saurais exprimer en quelques mots tout ce qu'elle m'a apporté durant cette thèse, qui n'aurait jamais abouti sans sa présence au quotidien. C'est pourquoi je lui dédie ce manuscrit. Je pense enfin à mon papi Victor que j'ai eu le bonheur de voir pour la dernière fois lors de ma soutenance.*

**Résumé :**

Une des voies envisagées pour l'inspection ultrasonore des réacteurs de quatrième génération refroidis par du sodium liquide consiste à utiliser un transducteur immergé dans le sodium. Un bon couplage acoustique du transducteur avec le sodium est nécessaire. Cependant, sans précaution particulière, ce dernier n'est pas forcément obtenu. L'objectif est d'étudier les conditions d'apparition d'un très mauvais couplage acoustique.

Le non mouillage de la surface du transducteur par le sodium peut provoquer le piégeage de poches de gaz dans la rugosité. De plus, l'augmentation de la fraction surfacique de gaz à des interfaces contrôlées se traduit par une chute brutale de la transmission des ultrasons. Une première analyse quasi-statique, basée sur le modèle de la crevasse, permet d'étudier la stabilité de ces poches de gaz vis-à-vis de la température, de la pression hydrostatique, du niveau de saturation en gaz dissous dans le liquide. Une modélisation du comportement dynamique d'une poche de gaz de géométrie simple et une expérience de visualisation en eau montrent que la fraction surfacique de gaz à l'interface n'augmente pas sous l'effet de la pression acoustique. Afin de mener une étude paramétrique en fonction de la taille et la fraction surfacique des poches de gaz, plusieurs échantillons sont réalisés. Une expérience ultrasonore, utilisant différentes fréquences, permet de mesurer la transmission à travers ces échantillons. Parallèlement, divers modèles décrivant la configuration expérimentale sont proposés. La comparaison des résultats expérimentaux et analytiques (du dernier modèle) montrent une évolution similaire de la transmission en fonction des différents paramètres.

**Mots clés :**

Ultrasons – Contrôle Non Destructif – Réacteurs nucléaires – Sodium liquide – Couplage acoustique – Mouillage – Interfaces imparfaites – Rugosité

---

**Contribution to the study of the transmission of ultrasound at a solid – gas – liquid interface.  
Application to non-destructive testing of the fourth generation of liquid sodium cooled reactors.**

**Abstract :**

One of the ways envisaged for the ultrasonic inspection of the fourth generation of liquid sodium cooled reactors is to use a transducer immersed in sodium. A good acoustic coupling of the transducer with sodium is needed. However, without special precautions, it is not obtained in all situations. The goal is to study the conditions for the appearance of a very bad acoustic coupling.

Under certain conditions, the non wetting of the surface of the transducer by sodium causes trapping gas pockets in the roughness. Moreover, increasing amounts of surface gas fraction induces a sharp drop in the transmission of ultrasound. A first quasi-static analysis based on the crevice model allows to study the dependence of the stability of these gas pockets on the temperature, the hydrostatic pressure, and the level of dissolved gas saturation of the liquid. Modelling the dynamic behaviour of a simple gas pocket geometry and conducting an in-water viewing experience show that the gas surface fraction does not increase as a result of sound pressure transducer. In order to develop a parametric study based on the size and gas surface fraction, several samples are made. An ultrasonic experiment using various frequencies can measure the transmission through these samples. Meanwhile, three different models describing the experimental setup are proposed. The comparison of experimental and analytical results (of the last model) show a similar pattern of the dependence of the transmission on the various parameters.

**Keywords :**

Ultrasound – Non-Destructive Testing – Nuclear reactor – Liquid sodium – Acoustic coupling – Wetting – Imperfect interfaces – Roughness

Laboratoire de Caractérisation Non Destructive  
Université de la Méditerranée  
IUT Aix-en-Provence  
Avenue Gaston Berger  
13625 Aix-en-Provence Cedex 1

Commissariat à l'Energie Atomique  
Centre de Cadarache  
DEN/DTN/STPA/LTTS  
Bâtiment 201  
13108 Saint Paul lez Durance Cedex





# Table des matières

<b><u>Notations</u></b>	<b>13</b>
<b><u>Introduction</u></b>	<b>19</b>
<b><u>Contexte</u></b>	<b>23</b>
<b>1. La surveillance en exploitation par ultrasons</b>	<b>23</b>
<b>2. Les transducteurs ultrasonores envisagés</b>	<b>24</b>
2.1. TUSHT	24
2.2. Piézocomposites	24
<b>3. Le couplage acoustique : transmission des ultrasons à l'interface solide – liquide</b>	<b>25</b>
3.1. Expériences de couplage acoustique	26
3.1.1. TUSHT	26
3.1.2. Transducteurs piézocomposite	27
3.1.3. Conclusion	27
3.2. Mouillage des structures en acier inoxydable austénitique	27
3.3. Problématique du couplage acoustique	28
3.3.1. Couplage acoustique des structures	28
3.3.2. Couplage acoustique des transducteurs ultrasonores	29
<b>4. Solutions expérimentées pour les TUSHT. Contraintes et limites</b>	<b>29</b>
4.1. Maintien du transducteur sous atmosphère neutre après obtention du mouillage	29
4.2. Dépôt d'or	29
<b>5. Conclusion</b>	<b>30</b>
<b><u>Chapitre I : Mouillage composite</u></b>	<b>31</b>
<b>I.1. Introduction</b>	<b>31</b>
<b>I.2. Cas général</b>	<b>31</b>
I.2.1. Définition du mouillage	31
I.2.2. Mouillage de surfaces idéales : loi de Young	32
I.2.3. Mouillage de surfaces réelles	32
I.2.3.1. Définition de la rugosité	33
I.2.3.2. Définition de l'hystérésis de mouillage	33
I.2.3.3. Modèle de Wenzel	34
I.2.3.4. Modèle de Cassie-Baxter	35
I.2.3.5. Interfaces composites	36
I.2.3.6. Détermination du type d'interface et choix du modèle en fonction de la rugosité	38

I.2.4. Conditions pour générer une interface composite	39
I.2.4.1. Discontinuités de pente	39
I.2.4.2. Rugosité à géométrie idéale	41
I.2.4.3. Rugosité de surfaces réelles	42
<b>I.3. Système acier inoxydable austénitique – sodium liquide</b>	<b>43</b>
I.3.1. Le sodium liquide	44
I.3.2. Mouillage et stabilité des films surfaciques d'oxydes	45
I.3.3. Mouillage des métaux de transition par le sodium liquide	45
I.3.3.1. Observations générales	46
I.3.3.2. Classement des métaux de transition en trois groupes	47
I.3.4. Mouillage de l'acier inoxydable austénitique par le sodium	48
I.3.4.1. Influence de la température sur des temps courts	49
I.3.4.2. Influence du couple temps - température	50
I.3.4.3. Influence de la constitution du film d'oxydes : teneur en chrome	51
I.3.4.4. Influence de l'épaisseur du film d'oxydes	51
I.3.4.5. Influence de la concentration en oxygène dissous dans le sodium	52
I.3.4.6. Interprétation par la thermodynamique chimique	53
I.3.4.7. Influence de divers traitements de surface sur le mouillage	54
<b>I.4. Système équivalent silicium hydrophobe – eau</b>	<b>54</b>
I.4.1. Les échantillons	55
I.4.1.1. Les échantillons fins	56
I.4.1.2. Les échantillons épais	58
I.4.2. Le traitement hydrophobe	60
I.4.3. Mesures d'angles de contact	61
<b>I.5. Conclusion</b>	<b>63</b>
<b><u>Chapitre II :</u></b>	
<b><u>Comportement des poches de gaz en régime quasi-statique</u></b>	<b>65</b>
<b>II.1. Introduction</b>	<b>65</b>
<b>II.2. Stabilité et nucléation des bulles : bibliographie</b>	<b>66</b>
II.2.1. Niveau de saturation en gaz d'un liquide	66
II.2.2. Stabilité d'une bulle de gaz libre dans un liquide	67
II.2.2.1. Liquide saturé	67
II.2.2.2. Liquide sursaturé	68
II.2.3. Le phénomène de nucléation de bulles	69
II.2.3.1. Type 1 : nucléation homogène classique	70
II.2.3.2. Type 2 : nucléation hétérogène classique	70
II.2.3.3. Type 3 : nucléation pseudo-classique	70
II.2.3.4. Type 4 : nucléation non classique	71
<b>II.3. Le modèle de la crevasse en régime quasi-statique</b>	<b>71</b>
II.3.1. Stabilisation du nucleus vis-à-vis du niveau de saturation en gaz du liquide	72
II.3.2. Prise en compte de la pression hydrostatique	74
II.3.3. Application du modèle à des géométries particulières de motifs de rugosité	78
II.3.3.1. Trous cylindriques et rainures à section rectangulaire	78
II.3.3.2. Rainures à section triangulaire	80
<b>II.4. Influence de la pression hydrostatique et du niveau de saturation en gaz : Expériences</b>	<b>85</b>

II.4.1. Influence de la pression hydrostatique	85
II.4.1.1. Procédure expérimentale	86
II.4.1.2. Résultats	86
II.4.1.3. Interprétations et discussion	88
II.4.2. Influence du niveau de saturation	89
II.4.2.1. Présentation du dispositif expérimental	90
II.4.2.2. Résultats	90
II.4.2.3. Interprétations et discussion	91
<b>II.5. Conclusion</b>	<b>92</b>
<b><u>Chapitre III :</u></b>	
<b><u>Comportement des poches de gaz suite à une variation de pression ultrasonore</u></b>	<b>94</b>
<b>III.1. Introduction</b>	<b>94</b>
<b>III.2. Le modèle de la crevasse appliqué à la cavitation acoustique</b>	<b>95</b>
III.2.1. Bref historique de l'évolution du modèle	95
III.2.2. Le critère de nucléation réexaminé par Atchley et Prosperetti	95
<b>III.3. Le modèle de la crevasse appliqué aux crevasses des échantillons</b>	<b>96</b>
III.3.1. Hypothèses du modèle et relations de base	96
III.3.2. Ménisque ancré à l'embouchure de la crevasse	100
III.3.2.1. Mouvement du ménisque suite à une surpression	100
III.3.2.2. Mouvement du ménisque suite à une dépression	101
III.3.2.3. Résultats numériques et discussion	103
III.3.3. Déplacement du ménisque vers le fond de la crevasse	106
III.3.4. Déplacement du ménisque hors de la crevasse	108
III.3.5. Conclusion sur cette analyse	110
<b>III.4. Régimes fréquentiels de comportement de la poche de gaz</b>	<b>111</b>
III.4.1. Raideur de la poche de gaz	114
III.4.2. Masse de radiation de la poche de gaz	115
III.4.3. Calcul de la fréquence propre des poches de gaz cylindriques	116
<b>III.5. Visualisation des poches de gaz soumises à un champ ultrasonore</b>	<b>117</b>
III.5.1. Contexte et objectif	117
III.5.2. Tentative de justification de l'hypothèse de coalescence	117
III.5.3. Le dispositif expérimental	119
III.5.4. Les images	123
III.5.5. Procédure expérimentale	125
III.5.6. Résultat et interprétation	126
<b>III.6. Conclusion</b>	<b>126</b>
<b><u>Chapitre IV : Transmission des ultrasons à une interface composite</u></b>	<b>128</b>
<b>IV.1. Introduction</b>	<b>128</b>
<b>IV.2. Mesure de la transmission ultrasonore à une interface composite contrôlée</b>	<b>129</b>
IV.2.1. Fonction de transfert de l'interface	129
IV.2.2. Expériences ultrasonores précédentes	130

IV.2.2.1. Surfaces rugueuses mouillées	131
IV.2.2.2. Interfaces composites	131
IV.2.3. Expérience en eau avec des échantillons épais	134
IV.2.3.1. Objectifs et principe	134
IV.2.3.2. Épaisseur des échantillons	135
IV.2.3.3. Les paramètres	136
IV.2.3.4. Description du dispositif expérimental	139
IV.2.3.5. La méthode expérimentale	141
IV.2.3.6. Acquisition des signaux et traitement	145
IV.2.3.7. Résultats	146
<b>IV.3. Bibliographie sur la transmission des ultrasons aux interfaces en incidence normale</b>	<b>152</b>
IV.3.1. Interfaces planes et lisses	152
IV.3.1.1. Une seule interface	152
IV.3.1.2. Interfaces successives : milieu multicouche	153
IV.3.2. Interface imparfaite entre deux solides : modèle masse-ressort	155
IV.3.2.1. Introduction	155
IV.3.2.2. Présentation du modèle	156
IV.3.2.3. Raideur surfacique de l'interface $K$	160
IV.3.2.4. Masse surfacique de l'interface $M$	160
<b>IV.4. Modélisation de la transmission à une interface composite</b>	<b>161</b>
IV.4.1. Les différents domaines de diffusion	161
IV.4.2. Données d'entrée des modèles	163
IV.4.3. Modèle avec impédance acoustique effective	163
IV.4.4. Modèle à ressort avec raideur d'une couche interfaciale effective	165
IV.4.4.1. Raideur interfaciale	166
IV.4.4.2. Masse interfaciale	166
IV.4.4.3. Résultats	167
IV.4.5. Modèle masse-ressort avec raideur d'un ressort effectif	168
<b>IV.5. Conclusion</b>	<b>171</b>
<b><u>Conclusion et perspectives</u></b>	<b>173</b>
<b><u>Bibliographie</u></b>	<b>177</b>
<b><u>Annexe 1 : Loi de Laplace</u></b>	<b>185</b>
<b><u>Annexe 2 : Mouillage de certains métaux de transition par le sodium liquide</u></b>	<b>187</b>
<b><u>Annexe 3 : Modélisation de la mesure</u></b>	<b>197</b>

## Notations

---

$a$	Rayon du piston bafflé
$c$	Chapitre II : Concentration en gaz dissous dans un liquide. Chapitre III et IV : vitesse de phase de l'onde acoustique (longitudinale) ou célérité.
$c_{eff}$	vitesse de phase effective de l'onde acoustique dans un milieu effectif.
$c_b$	Concentration en gaz dissous dans un liquide au voisinage de l'interface liquide-gaz d'une bulle
$c_s$	Concentration de saturation en gaz dissous dans un liquide
$d$	Diamètre d'un trou cylindrique ou plus généralement d'un diffuseur
$d_c$	Epaisseur d'une couche homogène d'un matériau
$dA$	Petite variation de l'aire de la surface d'une bulle
$dE$	Petite variation d'énergie de surface suite à un petit déplacement $dx$ de la ligne de contact
$dp$	Petite variation de pression du liquide qui s'applique sur le ménisque
$dR$	Petite variation du rayon d'une bulle
$dV$	Petite variation du volume d'une bulle
$dx$	Petit déplacement dans la direction $x$
$du_{PG}$	Petit déplacement du ménisque
$e$	Distance séparant deux crevasses ou cavités voisines
$e'$	Distance séparant deux trous cylindriques non immédiatement voisins
$f$	Fréquence de l'onde acoustique
$f_{PG}$	Fréquence propre de la poche de gaz
$g$	Accélération de la pesanteur
$h$	Profondeur d'une crevasse
$h_{cc}$	Amplitude crête à creux d'une rugosité en dents de scie
$h_L$	Profondeur d'immersion dans un liquide
$h_{Lmax}$	Profondeur maximale à ne pas dépasser pour s'assurer que la ligne de contact reste ancrée à une position donnée dans la crevasse

---

$h_{Lmin}$	Profondeur minimale à ne pas dépasser pour s'assurer que la ligne de contact reste ancrée à une position donnée dans la crevasse
$k$	Nombre d'onde de l'onde acoustique
$k_{eff}$	Nombre d'onde effectif de l'onde acoustique dans un milieu effectif
$k_{PG}$	Raideur statique de la poche de gaz
$l$	Longueur de la rainure à section rectangulaire
$l_c$	Longueur capillaire d'un liquide
$m_r$	Masse de radiation due au liquide entraîné par le mouvement du ménisque
$p$	Pression
$p_{atm}$	Pression atmosphérique
$p_A$	Pression acoustique
$p_{AA}$	"Pression acoustique d'avance"
$p_{AP}$	Pression acoustique telle que $\theta$ atteint $\pi/2$
$p_{AR}$	"Pression acoustique de recul"
$p_{ext}$	Pression à l'extérieur de la bulle
$pf_{max}$	Flèche maximale du ménisque lorsqu'il est concave du point de vue du liquide
$p_g$	Pression partielle du gaz dans le gaz de couverture
$p_G$	Pression partielle de gaz dans une cavité (bulle ou poche de gaz)
$p_{int}$	Pression à l'intérieur de la bulle
$p_L$	Pression dans le liquide
ppm	Parties par million
$p_v$	Pression de vapeur d'un liquide
$p_\gamma$	Pression de Laplace
$r$	Dimension caractéristique de l'embouchure d'une crevasse : rayon pour une crevasse conique et cylindrique, demi-largeur pour une crevasse en forme de rainure.
$r_m$	Rayon du cercle de contact du ménisque de la poche de gaz
$r_w$	Paramètre de rugosité représentant le rapport entre l'aire réelle de la surface rugueuse et l'aire géométrique faisant abstraction de la rugosité
$x$	Coordonnée
$t$	Temps
$t(f)$	Transformée de Fourier du coefficient de transmission à la fréquence $f$ de l'interface considérée

---

$u$	Déplacement
$u_I$	Déplacement supplémentaire dû à la déformation locale dans le voisinage de l'interface
$u_{LC}$	Déplacement de la ligne de contact à l'intérieur de la crevasse
$u_P$	Déplacement qui aurait existé si l'interface avait été "parfaite" (sans aucune discontinuité)
$u_{PG}$	Déplacement du ménisque moyenné sur $S_c$
$u_S$	Déplacement ou variation d'épaisseur de la fraction de solide contenue dans la couche interfaciale
$u_T$	Somme des déplacements relatifs de deux points éloignés l'un de l'autre, et sur des côtés opposés de part et d'autre de l'interface
$v$	Vitesse particulaire
$w$	Epaisseur du milieu contenant les inclusions ou les pores
$y$	Equivalent complexe de $u_{PG}$
$Acc$	Amplitude crête-à-crête de l'écho transmis à travers un échantillon
$A_1^R$ et $A_2^R$	Premier et second écho du signal réfléchi
$A_1^T$ et $A_2^T$	Premier et second écho du signal transmis
$A^T(f)$	Transformée de Fourier du signal ultrasonore à la fréquence $f$
$C$	Courbure d'une surface
$C_{11}, C_{22}, C_{33}$	Constantes élastiques suivant les directions principales
$D$	Diamètre du diaphragme du traducteur
$E$	Module d'élasticité
$F(t)$	Force extérieure s'exerçant sur le ménisque
$FTI\_t$	Fonction de Transfert de l'Interface en mode transmission
$G$	Tension de gaz dans un liquide
$G_s$	Tension de gaz dans un liquide saturé en gaz dissous
$H$	Fonction de transfert du système masse-ressort
$I_0$	Séparation champ proche-champ lointain
$K$	Raideur surfacique du ressort distribué dans le modèle masse-ressort
$K_H$	Constante de la loi de Henry
$K_{PG}$	Raideur surfacique de la poche de gaz
$L$	épaisseur d'un échantillon
$M$	Masse surfacique de la masse distribuée dans le modèle masse-ressort



---

$Me$	Symbole chimique d'un métal de transition
$M_r$	Masse de radiation surfacique de la poche de gaz
$P_A$	Amplitude de la pression acoustique
$R$	Rayon de courbure d'une surface ou rayon d'une bulle
$Ra$	Écart moyen arithmétique d'un profil de rugosité évalué : moyenne arithmétique des valeurs absolues des ordonnées à l'intérieur d'une longueur de base
$Rc$	Hauteur moyenne des éléments d'un profil de rugosité : valeur moyenne des hauteurs des éléments du profil à l'intérieur d'une longueur de base
$Rt$	Hauteur totale d'un profil de rugosité : somme de la plus grande des hauteurs de saillie du profil et de la plus grande des profondeurs de creux du profil à l'intérieur d'une longueur d'évaluation
$Rz$	Hauteur maximale d'un profil : somme de la plus grande des hauteurs de saillie du profil et de la plus grande des profondeurs de creux du profil à l'intérieur d'une longueur de base.
$S_c$	Surface de la crevasse projetée sur la face de l'échantillon
$T$	Température
$T'$	Température initiale
$U$	Coefficient complexe donnant l'amplitude et la phase du déplacement de l'onde acoustique
$V$	Volume de la poche de gaz
$V_c$	Volume de la crevasse
$V_{cal}$	Volume algébrique de la calotte formée par le ménisque
$Z$	Impédance acoustique caractéristique
$Z_{eff}$	Impédance acoustique caractéristique effective d'un milieu effectif
$Z_{local}$	Impédance acoustique caractéristique locale
$Z_{int}$	Impédance caractéristique intrinsèque d'une couche d'un matériau
$\theta$	Angle local de contact d'équilibre
$\theta^*$	Angle de contact d'équilibre apparent
$\theta_A$	Angle de contact d'avance
$\theta_C$	Angle de contact tel qu'il est plus favorable énergétiquement de suivre la rugosité si l'angle de Young est compris entre $90^\circ$ et cet angle

---

$\theta_R$	Angle de contact de recul
$\theta_Y$	Angle de Young
$\theta_{Yi}$	angle de Young de l'espèce $i$
$\theta_{Ymoy}$	Angle $\theta_Y$ moyen sur l'ensemble des échantillons
$\theta_Y^{\max W}$	Valeur limite maximale de l'angle Young dans le modèle de Wenzel
$\theta_{\min B}^*$	Valeur limite minimale de l'angle de contact d'équilibre apparent dans le modèle de Bico
$\phi_i$	Fraction surfacique occupée par l'espèce $i$
$\phi_S$	Fraction surfacique occupée par le solide
$\rho$	Masse volumique
$\rho_0$	Masse volumique du matériau original
$\rho_{eff}$	Masse volumique effective d'un milieu
$\overline{\rho(x)}$	Masse volumique effective, moyennée dans le plan $y - z$
$\alpha$	Angle local de contact d'équilibre sur le plan de la face de l'échantillon
$\alpha_s$	Rapport de saturation en gaz dissous dans un liquide
$\sigma$	Sursaturation en gaz dissous dans un liquide
$\gamma_{LV}$	Energie de surface ou interfaciale liquide-gaz
$\gamma_{SL}$	Energie de surface ou interfaciale solide-liquide
$\gamma_{SV}$	Energie de surface ou interfaciale solide-gaz
$\beta$	Demi-angle d'ouverture d'une crevasse
$\pi$	Nombre pi
$\Lambda$	Constante telle que $R = \Lambda/C$ avec $\Lambda = 2$ pour le trou cylindrique et $\Lambda = 1$ pour la rainure à section rectangulaire
$\phi_G$	Fraction surfacique de gaz à une interface solide-liquide
$\phi_T$	Fraction surfacique apparente de trous cylindriques
$\tau$	Fraction de surface non gravée d'un échantillon ou fraction surfacique d'interface purement solide – liquide
$\tau_d$	Constante de temps de la perte de gaz d'une cavité par diffusion
$\varphi$	Chapitre I : Angle d'inclinaison caractérisant une discontinuité de pente convexe du point de vue du liquide. Chapitre III : déphasage de l'onde acoustique

---

$\psi$	Angle d'inclinaison caractérisant une discontinuité de pente concave du point de vue du liquide
$\kappa$	Exposant polytropique
$\gamma$	Rapport de la chaleur spécifique à pression constante à celle à volume constant
$\lambda$	Longueur d'onde de l'onde acoustique
$\omega$	Pulsation de l'onde acoustique
$\omega_{pG}$	Pulsation propre de la poche de gaz
$\chi$	Coefficient de compressibilité
$\chi_{eff}$	Coefficient de compressibilité effectif d'un milieu
$\Gamma$	Contrainte
$\Delta p$	Ecart de pression entre l'intérieur et l'extérieur de la bulle
$\Delta G$	Enthalpie libre
$\Delta fG$	Enthalpie libre de formation d'un composé chimique
$\Delta rG$	Enthalpie libre d'une réaction chimique
$\overline{\Delta G_{O_2}}$	Potentiel d'oxygène

Exposant $gh$	Fait référence à l'interface gravée hydrophobe étudiée
Exposant $l$	Fait référence à l'interface lisse
Indice 0	Désigne les conditions initiales de la poche de gaz
Indice $gh$	Fait référence à l'échantillon gravé hydrophobe étudié
Indice $G$	Fait référence au gaz c'est-à-dire à l'air
Indice $i$	Fait référence à l'onde incidente
Indice $l$	Fait référence à l'échantillon de référence
Indice $L$	Fait référence au liquide c'est-à-dire à l'eau
Indice $LS$	Fait référence au sens de propagation solide vers liquide
Indice $p$	Fait référence à la pression pour les coefficients de transmission ou réflexion
Indice $r$	Fait référence à l'onde réfléchie
Indice $v$	Fait référence à la vitesse pour les coefficients de transmission ou réflexion
Indice $S$	Fait référence au solide c'est-à-dire au silicium
Indice $SL$	Fait référence au sens de propagation liquide vers solide
Indice $t$	Fait référence à l'onde transmise

## **Introduction**

---

Les réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium liquide représentent une filière de référence pour les réacteurs nucléaires de quatrième génération. Parmi les objectifs de R&D innovante dévolus à cette filière, l'amélioration de son potentiel d'inspection apparaît comme une nécessité absolue. En effet, le Contrôle Non Destructif (CND) des réacteurs refroidis par du sodium liquide se heurte aux difficultés inhérentes à ce caloporteur telles que son opacité et son utilisation à température élevée. Les techniques ultrasonores constituent une solution prometteuse qui permet de s'affranchir de ces difficultés. Un des axes de recherche actuellement exploré est l'inspection effectuée à l'aide d'appareils ultrasonores immergés dans le sodium. Dans ce but, le CEA a notamment mis au point le Traducteur UltraSonore Haute Température (TUSHT), capable de supporter une température d'au moins 550°C.

L'usage d'un traducteur, introduit pendant une période de contrôle dans le sodium à 180°C, le réacteur étant à l'arrêt, nécessite l'obtention d'un bon couplage acoustique entre le traducteur et le sodium mais aussi entre la structure à inspecter et le sodium. Concernant le couplage entre la structure et le sodium, celui-ci est obtenu définitivement lors de la première mise en service du réacteur grâce à une montée en température du sodium au-delà de 350°C. En revanche, pour le TUSHT, dont le diaphragme est en acier inoxydable austénitique, l'expérience a montré qu'un bon couplage acoustique du diaphragme n'est pas obtenu à 180°C, lors de la première immersion du traducteur. Des solutions pour l'obtenir existent mais elles sont contraignantes. Il s'agit au travers de la thèse de justifier physiquement ces solutions, mais aussi et surtout de proposer d'autres voies sur la base d'une analyse pluridisciplinaire.

Il apparaît que la qualité du couplage acoustique, en d'autres termes le coefficient de transmission des ultrasons à l'interface solide-liquide, est liée à la "qualité" du mouillage du diaphragme par le sodium liquide. Il est supposé que la présence de microscopiques poches de gaz, piégées entre le solide et le liquide dans les anfractuosités de la rugosité, peut être à l'origine de ce mauvais couplage acoustique. Par ailleurs, de précédents travaux portant sur le mouillage d'échantillons en acier par l'alliage liquide plomb-bismuth [Les04, Moy05] ont démontré que le caractère non-mouillant de l'interface métal liquide – acier et la rugosité des

surfaces solides peuvent provoquer le piégeage de poches de gaz microscopiques à l'interface. De plus, les résultats ont montré que la présence conjointe des trois phases (solide, liquide et gaz) au niveau de cette interface, qui sera appelée composite, entraîne une diminution très importante de la transmission des ultrasons, comme si un film de gaz séparait le solide du liquide. Il a été alors suggéré que les poches de phase vapeur pouvaient croître et coalescer, diminuant ainsi fortement la proportion d'interface liquide-solide. Ces travaux proposaient en perspective de confirmer l'hypothèse de coalescence en mettant en œuvre une étude théorique et expérimentale s'appuyant sur les connaissances des phénomènes de cavitation acoustique.

Dans cette présente étude, il s'agit donc tout d'abord de comprendre les phénomènes impliqués dans le couplage acoustique afin de justifier l'hypothèse de l'interface composite et d'évaluer l'hypothèse de coalescence. L'objectif est ensuite de déterminer les mécanismes d'interaction de l'onde ultrasonore avec une interface composite afin de prédire la qualité de la transmission à cette interface. Une configuration usuelle simple de contrôle en incidence normale par rapport à l'interface est étudiée. Après avoir introduit le contexte industriel de la thèse, quatre parties différentes seront abordées : tout d'abord la thématique du mouillage composite, ensuite la stabilité et le comportement des poches de gaz en régime quasi-statique puis sous un champ ultrasonore, enfin l'étude de la transmission des ultrasons à une interface composite.

Dans le premier chapitre, une étude bibliographique est menée pour déterminer les mécanismes à l'origine du piégeage des poches de gaz à l'interface entre le sodium liquide et l'acier austénitique. Les différents facteurs contrôlant le mouillage de l'acier inoxydable austénitique par le sodium sont ensuite identifiés. L'expérimentation en sodium, dans des conditions représentatives de celles du réacteur, nécessite de disposer d'installations expérimentales élaborées, avec des durées de mise en œuvre et des contraintes réglementaires d'exploitation incompatibles avec les besoins, la réactivité nécessaire et le planning d'une thèse. C'est pour cette raison qu'un système non-mouillant équivalent a été utilisé. Il s'agit du silicium hydrophobe – eau, le silicium offrant la possibilité de modéliser sa rugosité par des procédés spécifiques. Lorsque cette surface rugueuse est mise en contact avec de l'eau, la fraction surfacique de gaz piégé est ainsi connue. Plusieurs échantillons avec des rugosités contrôlées ont été réalisés pour ce travail de thèse.

Le chapitre suivant est consacré à l'analyse des conditions de stabilité de ces poches de gaz en régime quasi-statique. Le modèle de la crevasse est utilisé. Celui-ci permet tout d'abord d'envisager un scénario expliquant la dissolution des poches de gaz dans le cas du système

acier austénitique-sodium liquide à une température supérieure à 300°C. Il contribue ensuite à interpréter certaines observations expérimentales faites avec un autre liquide "métallique", l'alliage plomb-bismuth. Enfin, ce modèle permet, lorsqu'il est appliqué aux rugosités particulières des échantillons utilisés, d'envisager les conditions de pression et de saturation de l'eau pour lesquelles les poches de gaz sont stables.

Le comportement des poches de gaz soumises à une variation de pression ultrasonore est étudié dans le troisième chapitre. Le modèle de la crevasse est à nouveau appliqué à la rugosité particulière des échantillons utilisés. Une nouvelle expression de la fréquence de résonance des poches de gaz piégées dans des trous cylindriques est proposée. L'influence de la prise en compte des phénomènes inertiels sur la variation de volume des poches de gaz est discutée. Par ailleurs, une expérience originale utilisant un système de visualisation optique est menée pour observer si le champ acoustique généré par les traducteurs peut engendrer une variation sensible du volume des poches de gaz. Elle permet d'étudier l'hypothèse selon laquelle la très faible transmission des ultrasons aux interfaces composites contrôlées a pour origine une augmentation de la fraction surfacique de gaz présent à l'interface voire une coalescence des poches de gaz sous l'action des ultrasons.

Dans le dernier chapitre, à partir des résultats précédents, une modélisation et une expérience ultrasonore en eau sont réalisées afin de prédire et de mesurer le coefficient de transmission à l'interface entre la surface hydrophobe à rugosité contrôlée des échantillons et l'eau. L'objectif principal est de quantifier l'influence de divers paramètres de l'interface composite et des ultrasons sur le coefficient de transmission ultrasonore. Trois modèles différents sont proposés. Le premier est basé sur la définition d'une impédance acoustique effective de la couche interfaciale composite. Cette impédance effective est introduite dans l'expression du coefficient de réflexion d'un milieu multicouche. Le second et le troisième modèle s'appuient sur le modèle masse-ressort largement utilisé pour décrire la transmission et la réflexion des ultrasons par une interface imparfaite entre deux solides. Le second modèle utilise comme raideur du ressort la raideur de la couche interfaciale effective. La raideur du troisième modèle, quant à elle, est celle d'un ressort effectif équivalent à deux ressorts : celui de la fraction surfacique du solide et celui de la fraction surfacique du gaz. Les résultats des trois modèles sont comparés à ceux de l'expérience. Des perspectives sont apportées pour permettre d'améliorer le dernier modèle qui apparaît prometteur.

Pour résoudre le problème industriel, des pistes de solutions techniques, se traduisant par des recommandations sur les caractéristiques du diaphragme du traducteur ultrasonore et

sur les conditions d'inspection, sont proposées dans chacune des parties. Celles-ci pourraient permettre d'éviter le piégeage des poches de gaz, de réduire la fraction surfacique de gaz, ou encore de les éliminer.

## Contexte

---

### 1. La surveillance en exploitation par ultrasons

Les réacteurs nucléaires à neutrons rapides refroidis au sodium liquide constituent une filière de référence pour la 4<sup>ème</sup> génération de réacteurs. Les axes de R&D innovante fixés pour ces réacteurs concernent principalement l'amélioration de la sûreté, la réduction du coût de l'investissement et l'augmentation de la disponibilité du réacteur.

La problématique de la surveillance en exploitation [Des07] s'inscrit de façon cruciale dans le domaine de la sûreté du réacteur. Mais la capacité pour un réacteur et ses composants à être inspectés facilement, complètement et rapidement, contribue aussi largement à améliorer la disponibilité de la centrale. L'objectif de la surveillance en exploitation est de s'assurer que les composants impliqués dans les fonctions de sûreté (et le bon fonctionnement) du réacteur demeurent en état de répondre à ces fonctions, tout au long de la vie du réacteur. L'enjeu est de pouvoir collecter facilement, complètement et rapidement des informations sur l'état général des composants et sur la présence éventuelle de défauts ou dégradations.

La surveillance en exploitation est sous-divisée en deux grandes parties. La première est la surveillance continue. Elle intervient pendant le fonctionnement nominal du réacteur à la température d'environ 550°C. Les contrôles périodiques représentent la seconde partie. Il s'agit de vérifications périodiques et non destructives des composants du réacteur nucléaire. Ils s'effectuent à l'arrêt du réacteur à une température d'environ 180°C.

L'inspection des réacteurs refroidis par du sodium liquide comporte certaines difficultés liées à l'utilisation de ce caloporteur. Le sodium est un métal opaque utilisé à température élevée, son point de fusion avoisinant 100°C. Par ailleurs, sa réactivité avec l'air et l'eau et son caractère corrosif rendent difficiles des éventuelles opérations de vidange du réacteur.

L'utilisation des ultrasons permet de s'affranchir de ces difficultés. Les techniques ultrasonores peuvent être utilisées, par exemple, pour localiser les diverses structures internes du bloc réacteur immergées en sodium en analysant les échos réfléchis par ces structures. Cela peut être effectué à l'aide d'appareils ultrasonores immergés dans le sodium par exemple.



Toutefois, ces appareils doivent être capables de supporter de hautes températures : 180°C pour les contrôles périodiques et 550°C pour la surveillance continue. Des dispositifs résistants à haute température ont été développés et sont utilisés depuis longtemps en France. Les dispositifs VISUS (guide d'ondes, utilisé à 180°C) et SONAR (traducteurs immergés, utilisé jusqu'à 550°C) qui permettent de faire de la télémétrie en sont des exemples. Le CEA a notamment mis au point le TUSHT, Traducteur UltraSonore Haute Température, capable de supporter une température du sodium d'au moins 550°C.

Dans le cadre des contrôles périodiques, les instruments de mesure et de contrôle sont introduits dans le réacteur au cours des périodes d'arrêt. Ils doivent être opérationnels le plus rapidement possible compte tenu des contraintes économiques sur la durée des périodes d'arrêt d'un réacteur nucléaire.

Durant cette période, les niveaux de radiation sont réduits, la température du caloporteur est maintenue autour de 180°C, la puissance résiduelle du réacteur est quasiment nulle. Cela implique que les gradients de température, donc de célérité ultrasonore, sont faibles. Ces conditions sont favorables à la propagation des ondes ultrasonores et à leur modélisation.

## **2. Les traducteurs ultrasonores envisagés**

Pour réaliser des opérations de contrôle périodique, deux types de traducteurs ultrasonores destinés à être immergés dans le sodium à 180°C sont envisagés, schématiquement : le TUSHT, plutôt dédié à effectuer de la télémétrie, et les traducteurs piézocomposites, notamment pour faire du contrôle non destructif volumique.

### **2.1. TUSHT**

Le TUSHT comporte un élément piézoélectrique en Niobate de lithium  $\text{LiNbO}_3$  qui est brasé sur un diaphragme (appelé aussi face active, face avant, ou encore lame de phase) en acier inoxydable austénitique 304L. Le diaphragme assure la protection du TUSHT vis-à-vis du sodium et permet le couplage et la propagation des ondes ultrasonores émises et reçues par le TUSHT. Ce traducteur travaille sur des fréquences porteuses allant de 0,5 à 5 MHz.

### **2.2. Piézocomposites**

Le CEA a engagé une action destinée à développer des moyens de contrôle non destructif, à l'aide de traducteurs simples ou multiéléments, destinés à détecter des défauts

volumiques internes aux structures en acier immergées en sodium. Les traducteurs ultrasonores piézocomposites (à base de céramique type PZT) à diaphragme en résine ont été identifiés comme étant très prometteurs pour une utilisation à 180°C (température du sodium lors des contrôles périodiques). D'après Berton [Ber08], les arguments majeurs motivant le développement de ce type de capteurs sont :

- La facilité de mise en forme du diaphragme des capteurs piézocomposites pour obtenir une focalisation.
- La facilité de mise en œuvre pour réaliser des traducteurs multiéléments. Les multiéléments donnent accès à la focalisation et au balayage électroniques, ce qui permet une simplification de la mécanique et un gain de un à deux ordres de grandeur pour le temps de formation d'image.
- La possibilité d'obtenir de meilleures performances de résolution axiale (amortissement plus important) et de rapport signal à bruit (rendement du traducteur, adaptation à l'impédance acoustique du milieu de propagation).

### **3. Le couplage acoustique : transmission des ultrasons à l'interface solide – liquide**

L'usage d'un traducteur ultrasonore immergé dans le sodium liquide nécessite un bon couplage acoustique entre le traducteur et le sodium liquide, mais aussi, pour la détection de défauts internes aux structures, entre le sodium liquide et la structure à inspecter.

Pour obtenir un signal ultrasonore exploitable, il faut assurer un transfert de l'énergie acoustique suffisant entre l'élément piézoélectrique et la structure à examiner. L'efficacité de ce transfert est gouvernée par le transfert d'énergie aux interfaces qui dépend de la qualité du couplage acoustique. La qualité du couplage acoustique est liée aux différences d'impédance acoustique entre les milieux.

Sur la base de la relation classique exprimée en fonction des impédances acoustiques, la valeur théorique du coefficient de transmission de l'énergie acoustique à l'interface acier – sodium, calculé en incidence normale et en considérant l'interface parfaitement plane et lisse, est supérieure à celle de l'interface acier – eau (0,17 et 0,12 respectivement pour les interfaces acier – sodium et acier – eau). Les résultats expérimentaux [Lhu79] issus d'étalonnages en eau et en sodium de TUSHT (réputés mouillés) s'accordent avec cette donnée théorique, favorable au couple acier-sodium par rapport au couple acier eau. La différence d'impédance

entre le sodium et l'acier n'est pas un obstacle à une transmission satisfaisante des ondes acoustiques pour les besoins courants.

### 3.1. Expériences de couplage acoustique

Les expériences de couplage acoustique reportées ici concernent le couplage acoustique des deux types de traducteurs : TUSHT et piézocomposites. Il est rappelé que le matériau du diaphragme des TUSHT en contact avec le sodium est un acier inoxydable austénitique. Or, comme pour les réacteurs sodium français précédents (Phénix et Superphénix notamment), une nuance d'acier inoxydable austénitique est fortement envisagée comme matériau des structures du bloc réacteur du futur. Ainsi, les résultats obtenus pour le couplage acoustique des TUSHT sont généralisables, dans une certaine mesure, au couplage des structures du bloc réacteur à inspecter.

#### 3.1.1. TUSHT

En production courante, la rugosité du diaphragme des TUSHT est caractérisée par un paramètre de rugosité  $Ra = 0,4 \mu\text{m}$ . Les expériences [Duc88] ont montré que, dans la grande majorité des cas, l'apparition de signaux exploitables (rapport signal sur bruit convenable) se produit vers  $350^\circ\text{C}$  pour des traducteurs n'ayant jamais été immergés en sodium. Quelques rares exceptions ont été constatées à plus basse température ( $250^\circ\text{C}$ ) lorsqu'un polissage du diaphragme est effectué juste avant l'immersion en sodium. Par ailleurs, il a été constaté que la valeur de la température la plus fréquemment rencontrée permettant d'obtenir un bon couplage acoustique du TUSHT est du même ordre de grandeur que celle obtenue pour le mouillage de l'acier 304L.

Ducret suggère que, sans précaution particulière, il subsiste un film de gaz à l'échelle des micro-porosités de la paroi solide ainsi qu'une oxydation de celle-ci. Ce film de gaz "isolerait" le diaphragme du sodium liquide par une rupture brutale d'impédance acoustique à l'interface, l'impédance acoustique du gaz étant de plusieurs ordres de grandeur inférieure à celle de l'acier et du sodium liquide. A partir d'un code de calcul, Ducret montre qu'il suffit de  $1 \mu\text{m}$  de gaz pour perdre entre 30 dB (à 0,7 MHz) et 60 dB (à 1,5 MHz) d'amplitude de signal acoustique transmis à l'interface.

### 3.1.2. Traducteurs piézocomposite

Dominjon et Alberti [Dom99] ont réalisé une expérience consistant à étudier les signaux fournis par un traducteur en résine immergé en sodium entre 100 et 180°C. Les traducteurs fonctionnent mais les signaux sont instables et de faible amplitude. Un traitement de surface du diaphragme du traducteur (ponçage avec papier abrasif très fin et nettoyage à l'alcool) améliore la transmission du signal.

Cette expérience ne permet pas d'identifier la cause du manque d'amplitude et de l'instabilité des signaux. Les deux pistes évoquées pour expliquer ces phénomènes sont d'une part des désordres internes aux traducteurs liés à la montée en température et d'autre part la non-obtention ou non conservation du mouillage du diaphragme [Ber08].

Le programme sur ce type de traducteurs se poursuit. En l'état des résultats, le couplage acoustique entre la résine et le sodium ainsi que ses conditions d'optimisation ne sont pas acquis.

### 3.1.3. Conclusion

Outre les différences d'impédance acoustique entre les milieux, il apparaît que la qualité du couplage acoustique d'une surface solide avec le sodium liquide est liée aussi à la qualité du mouillage de cette surface par le sodium liquide. Berton [Ber93] fait remarquer que le passage des ondes sonores aux interfaces acier-sodium est obtenu avec une efficacité maximale quand le sodium mouille l'acier. La transmission des ultrasons à l'interface avec le sodium liquide n'est alors pas affectée par des phénomènes autres que ceux liés à la différence d'impédance acoustique entre les deux milieux.

Concernant le couplage acoustique du traducteur, il a été choisi d'orienter plus particulièrement l'étude sur le cas des TUSHT. En effet, contrairement aux TUSHT, très peu d'informations sont disponibles sur le mouillage de la résine des traducteurs piézocomposites. Même si l'étude se concentrera en priorité sur la transmission des ultrasons à l'interface acier inoxydable austénitique – sodium liquide, les résultats obtenus pourront être généralisés au cas des traducteurs piézocomposites tant que les propriétés physico-chimiques de l'interface acier – sodium ne sont pas impliquées dans l'analyse.

## 3.2. Mouillage des structures en acier inoxydable austénitique

Pour l'utilisation des composants, équipements et instruments de mesure immergés dans le sodium liquide, le mouillage des surfaces solides est souvent une condition nécessaire de

bon fonctionnement. En raison du manque de connaissance sur le mouillage et de la faible reproductibilité des essais, les pratiques des exploitants d'installations sodium, retenues jusqu'à aujourd'hui, pour obtenir le mouillage des surfaces en acier inoxydable austénitique par du sodium liquide sont de type conservatives [Des08]. Elles sont orientées vers un mode opératoire recherchant avant tout la garantie du mouillage des parois plutôt que son obtention rapide. Des abaques donnent des couples température / durée d'immersion qui permettent de garantir le mouillage des surfaces pour les nuances d'acier 304L et 316L, pour un état de surface et une pureté du sodium non contrôlés [Dep85].

La contrainte induite par l'obligation de réaliser le mouillage demeure cependant faible car il « suffit » pour l'obtenir de porter au moins une fois l'acier inoxydable austénitique et le sodium en contact à une température supérieure à 350°C pendant quelques heures. En effet, le mouillage par le sodium est "irréversible" puisqu'une fois obtenu, si la température du sodium est diminuée à une température inférieure à 350°C, il se maintient quand même. Cette contrainte intervient donc uniquement au moment de la mise en service de certains équipements. En fait, ce handicap n'est gênant que dans le cas où il est indispensable de rendre opérationnel un équipement dès son immersion dans le sodium lors des contrôles périodiques ou plus généralement lorsque le réacteur est à l'arrêt puisqu'alors la température du sodium avoisine 180°C. La possibilité d'obtenir le mouillage dans des conditions moins contraignantes (température plus faible ou durée d'immersion réduite), en jouant par exemple sur l'état ou la préparation des surfaces, n'a été que peu explorée en raison du faible intérêt qu'elle présentait jusqu'à alors pour l'exploitant d'une installation sodium [Des08].

### **3.3. Problématique du couplage acoustique**

Les expériences ont montré qu'un bon couplage acoustique, c'est-à-dire une bonne transmission des ultrasons à l'interface solide-liquide, n'est pas obtenu à 180°C (température à laquelle sont réalisés les contrôles périodiques). Pour les TUSHT comme pour toutes les surfaces en acier inoxydable austénitique immergées en sodium, se pose le problème de l'immersion initiale à des températures inférieures à 350°C.

#### **3.3.1. Couplage acoustique des structures**

La problématique du couplage acoustique des structures n'existe que pour le "point zéro" du réacteur (premier contrôle avant sa mise en fonctionnement normal) s'il est effectué avant toute montée préalable de la température au-delà de 350°C et si la température du

sodium pour ce point zéro est inférieure à 350°C. Or, il est admis aujourd'hui que le point zéro sera effectué après une montée préalable de la température du sodium au-delà de 350°C. C'est pourquoi, les objectifs de la thèse se sont orientés vers la problématique du couplage acoustique des traducteurs ultrasonores. Il est remarqué cependant que, pour des structures introduites pour la première fois en réacteur à une température du sodium inférieure à 350°C (lors de contrôles périodiques par exemple), se pose le problème d'un éventuel mouillage inégal sur toute leur surface. Cette "hétérogénéité" de mouillage, et donc de couplage acoustique pourrait notamment gêner l'étalonnage de la télémétrie.

### **3.3.2. Couplage acoustique des traducteurs ultrasonores**

Il existe un besoin concernant l'obtention rapide d'un bon couplage acoustique des traducteurs dès leur immersion en sodium à 180°C lors des contrôles périodiques, par exemple pour une utilisation potentielle des traducteurs pour l'intervention urgente [Duc88]. Pour les TUSHT à diaphragme en acier 304L non préparé ou non conditionné (voir ci-dessous § 4), cette exigence n'est pas satisfaite, et pour les traducteurs à diaphragme en résine les résultats actuels sont insuffisants pour recommander leur utilisation [Duc88, Dom99].

## **4. Solutions expérimentées pour les TUSHT. Contraintes et limites**

### **4.1. Maintien du traducteur sous atmosphère neutre après obtention du mouillage**

Il a été vu que pour un TUSHT dont le mouillage du diaphragme a été obtenu, par exemple en l'immergeant suffisamment longtemps dans du sodium à plus de 350°C, le couplage acoustique est optimal. Si lorsqu'il est retiré hors du sodium il est maintenu sous atmosphère neutre (argon) dans une enceinte étanche, un bon couplage acoustique sera à nouveau obtenu lors d'une nouvelle immersion même si la température du sodium est de 180°C [Duc74]. La conservation du TUSHT sous atmosphère neutre permet de préserver le diaphragme de toute oxydation. Cette solution est contraignante et par ailleurs l'expérience du CEA se limite à des périodes de mise sous argon n'excédant pas quelques heures.

### **4.2. Dépôt d'or**

Pour obtenir un couplage acoustique immédiat des TUSHT à 180°C, sans avoir recours à une élévation de température, la solution utilisée jusqu'ici par le CEA consiste à réaliser un

dépôt d'or sur cette surface ayant subie un polissage [Duc88]. Il a été vérifié expérimentalement que le couplage acoustique est alors obtenu « *instantanément* » dès 105°C [Duc81]. Le niveau de "propreté" du sodium pour cette expérience n'est pas connu.

L'interprétation de ces résultats expérimentaux suppose que l'or vient obturer les microcavités de la surface et la protège ensuite de l'oxydation. L'or est dissous dans le sodium lors de l'immersion et la surface d'acier inoxydable présente une surface exempte d'oxydes.

Outre son surcoût de fabrication, cette technique est limitée : elle ne fonctionne que pour la première immersion à basse température. Si le traducteur est retiré du sodium et exposé à l'air, l'oxydation du diaphragme qui en résulte s'oppose au mouillage lors d'une immersion suivante ; les parades pourraient être un stockage sous atmosphère neutre (cf. § 4.1) ou une redorure du diaphragme. Cette dernière solution présente des difficultés de mise en oeuvre.

L'obtention du couplage acoustique du TUSHT sans procéder à un dépôt d'or préalable constituerait un progrès en termes de fabrication et d'exploitation et une alternative moins contraignante et moins coûteuse serait appréciée.

## 5. Conclusion

La problématique industrielle de la thèse concerne l'obtention du bon couplage acoustique des TUSHT et des traducteurs piézocomposites à diaphragme en résine à une température de 180°C, à laquelle sont réalisés les contrôles périodiques du réacteur. A l'heure actuelle, le couplage des résines n'a pas été validé. Pour les TUSHT, des solutions existent mais elles sont jugées contraignantes. Ce travail de thèse doit permettre de justifier ces solutions en développant une analyse physique multidisciplinaire qui permettra aussi de proposer d'autres solutions.

# Chapitre I : Mouillage composite

---

## I.1. Introduction

Comme cela vient d'être évoqué, l'utilisation des TUSHT immergés en sodium est envisagée pour réaliser des opérations de contrôles périodiques des RNR sodium du futur. L'étude des phénomènes de mouillage de l'acier inoxydable austénitique, et en particulier de la nuance 304L, par le sodium liquide est alors fondamentale pour l'évaluation des performances et surtout des conditions d'utilisation de ces capteurs (température et teneur en oxygène du sodium, rugosité du diaphragme, etc.). En effet, d'une part le boîtier protégeant le capteur du contact direct avec le sodium liquide est en acier inoxydable austénitique 304L. D'autre part, le matériau de référence sélectionné pour les structures du bloc réacteur du futur RNR sodium est l'acier inoxydable austénitique 316L [Cou07].

Il est rappelé que l'hypothèse principale expliquant le mauvais couplage acoustique des TUSHT avec du sodium à une température inférieure à 350°C est la présence de poches de gaz piégées à l'interface entre le diaphragme et le sodium. C'est pourquoi, dans ce premier chapitre, une étude bibliographique est menée pour déterminer les mécanismes à l'origine du piégeage des poches de gaz.

Le cas général d'une surface solide rugueuse non mouillée par un liquide est tout d'abord traité. Les différents facteurs contrôlant le mouillage de l'acier inoxydable austénitique par le sodium liquide sont ensuite identifiés. Afin d'éviter les contraintes expérimentales liées au sodium liquide, un système surface solide hydrophobe-eau est considéré. Des résultats d'expérience de mouillage avec ce système sont présentés.

## I.2. Cas général

### I.2.1. Définition du mouillage

Le mouillage définit la propension d'un liquide à s'étaler sur une surface solide. Il est caractérisé par un angle de contact  $\theta$  pris au niveau de la ligne de contact (aussi appelée "ligne triple"), ligne de coexistence des trois phases liquide, solide et gaz.



### I.2.2. Mouillage de surfaces idéales : loi de Young

Dans le cas de surfaces idéales, c'est-à-dire chimiquement homogènes et atomiquement lisses, l'angle de contact est relié aux énergies interfaciales solide-liquide  $\gamma_{SL}$ , solide-gaz  $\gamma_{SV}$  et liquide-gaz  $\gamma_{LV}$  ( $\gamma_{LV}$  est aussi généralement appelée tension superficielle du liquide) par la relation de Young :

$$\cos \theta_Y = \frac{\gamma_{SV} - \gamma_{SL}}{\gamma_{LV}}. \quad (I.1)$$

Les systèmes solide-liquide peuvent être séparés en deux catégories suivant la valeur de l'angle de Young : les systèmes dits mouillants lorsque  $\theta_Y < 90^\circ$  (Fig. I.1.a) et les systèmes dits non mouillants lorsque  $\theta_Y > 90^\circ$  (Fig. I.1.b). Le mouillage est qualifié de total (ou complet) lorsque  $\theta_Y = 0^\circ$ , et "nul" lorsque  $\theta_Y = 180^\circ$ .

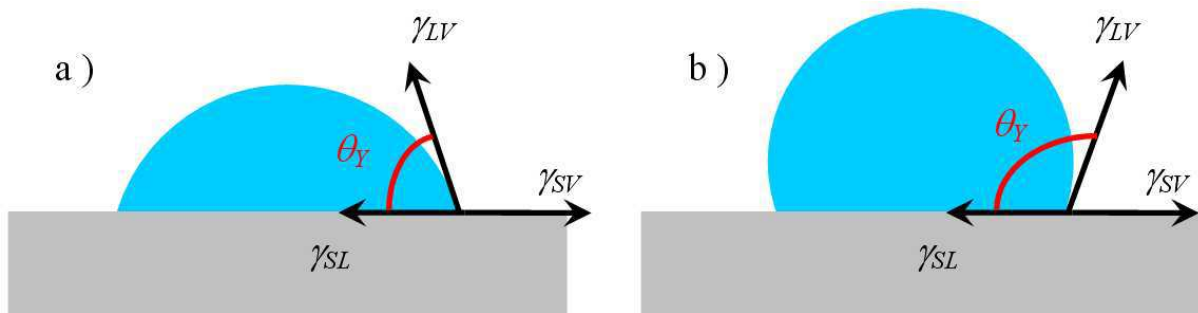


Figure I.1 : Schéma d'une goutte posée sur une surface chimiquement homogène et atomiquement lisse : a) système mouillant et b) système non mouillant.

### I.2.3. Mouillage de surfaces réelles

Le cas précédent considérait une surface idéale. Dans la réalité, les surfaces des solides sont à la fois hétérogènes chimiquement et géométriquement (rugosité). Dans ce qui suit, les notions de rugosité et d'hystérésis de mouillage sont définies. L'hystérésis de mouillage donne une indication à la fois sur le degré d'hétérogénéité du solide mais aussi sur la présence de poches de gaz entre le solide et la goutte (cf. § I.2.3.6). Par ailleurs, elle permet d'introduire les notions d'angles d'avance et de recul qui seront utilisées aux chapitres suivants. Le modèle de Wenzel est le premier à être présenté pour décrire le cas où l'hétérogénéité ne se traduit que par la rugosité de la surface solide. Le modèle de Cassie-Baxter est présenté ensuite pour décrire le cas d'une hétérogénéité uniquement d'origine chimique. Ce dernier sera aussi appliqué au cas de la rugosité seule au § I.2.3.4 pour traiter le cas particulier des interfaces piégeant du gaz.

### **I.2.3.1. Définition de la rugosité**

Une surface solide réelle n'est pas une surface parfaitement lisse. Selon la méthode d'usinage et les outils utilisés, mais aussi selon le matériau, elle présente de nombreuses irrégularités micro-géométriques. Ces irrégularités sont classées en deux catégories : des aspérités ou "pics", et des cavités ou "creux". L'ensemble de ces défauts de surfaces constituent la rugosité.

La rugosité peut être caractérisée par des paramètres normalisés. On peut citer notamment, parmi les plus utilisés, le paramètre  $Ra$ , qui correspond à la moyenne arithmétique des valeurs absolues des écarts à la moyenne.

### **I.2.3.2. Définition de l'hystérésis de mouillage**

L'angle de contact mesuré d'une goutte posée sur une surface qui présente des hétérogénéités de nature chimique et/ou géométrique est un angle macroscopique. Il dépend de la manière dont le liquide est déposé sur la surface. En effet, les hétérogénéités peuvent ancrer la ligne triple sur la surface ou au contraire favoriser son déplacement. Ce phénomène est dû au fait qu'à l'échelle de chaque hétérogénéité, l'angle local reste égal à l'angle de Young.

Lorsque l'on fait avancer de façon quasi-statique le liquide sur la surface, par exemple en ajoutant du liquide à la goutte avec une seringue, l'angle de contact mesuré augmente jusqu'à une valeur limite  $\theta_A$ , appelée angle d'avance maximum (Fig. I.2.a). Lorsque l'on fait reculer de façon quasi-statique le liquide sur la surface, par exemple en retirant du liquide à la goutte avec une seringue, l'angle de contact diminue jusqu'à une valeur limite  $\theta_R$ , appelée angle de recul minimum (Fig. I.2.b). Les angles d'avance et de recul, qui dépendent de la rugosité de la surface, encadrent l'angle d'équilibre apparent  $\theta^*$ . La différence entre les angles d'avance et de recul est appelée hystérésis de mouillage [Shu48, Goo52, Joh64].

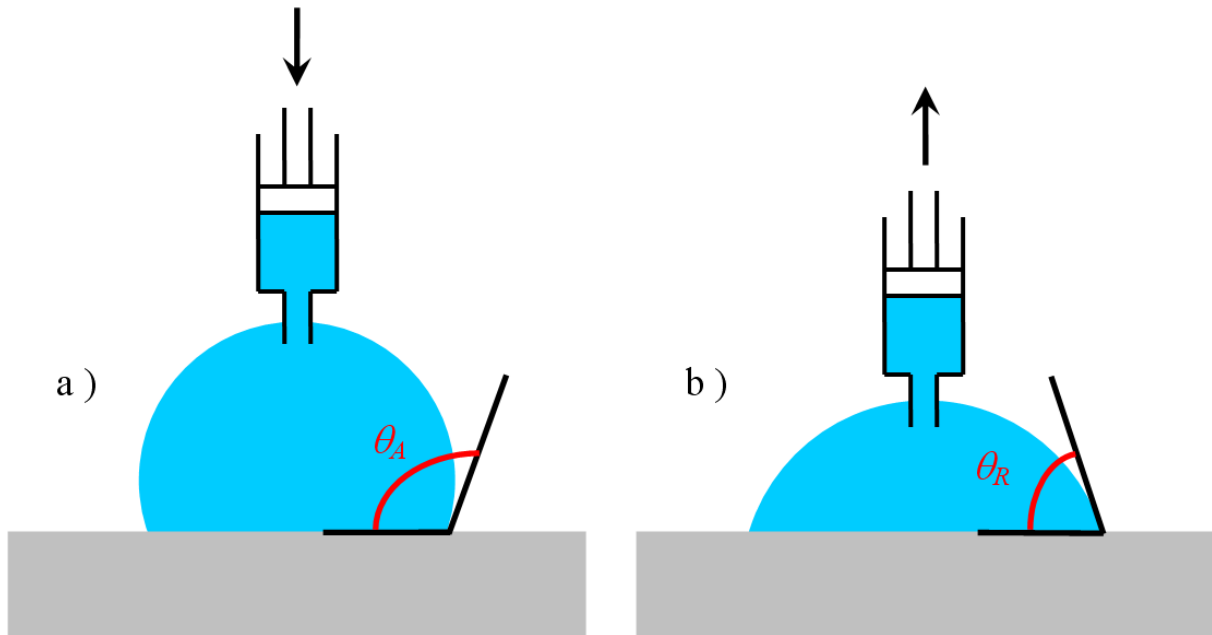


Figure I.2 : a) Angle d'avance lorsque du liquide est ajoutée dans la goutte et b) angle de recul lorsque du liquide est retiré de la goutte [DeG05].

### I.2.3.3. Modèle de Wenzel

Wenzel [Wen36] fut l'un des premiers à essayer de comprendre l'influence de la rugosité sur le mouillage. Il a considéré un liquide qui épouse parfaitement une surface dont la rugosité est caractérisée par le paramètre  $r_w$ , représentant le rapport entre l'aire réelle de la surface rugueuse et l'aire géométrique faisant abstraction de la rugosité ( $r_w > 1$ ).

Le modèle de Wenzel permet de déterminer l'angle de contact apparent  $\theta^*$  sur une surface rugueuse mais chimiquement homogène. L'angle de contact local est supposé donné par la relation de Young. De plus, l'échelle de la rugosité est considérée très petite devant celle de la goutte.

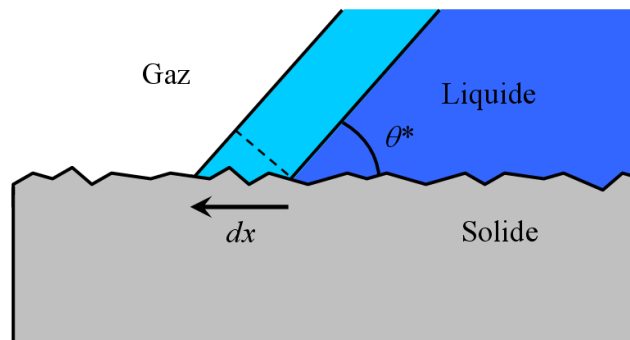


Figure I.3 : Bord d'une goutte placée sur une surface solide rugueuse. Un petit déplacement  $dx$  de la ligne de contact (vers la gauche) est représenté [DeG05].

Suite à un petit déplacement  $dx$  de la ligne de contact parallèlement à la surface (Fig. I.3), les énergies de surface, définies par unité de longueur de la ligne de contact, changent d'une quantité  $dE$  telle que :

$$dE = r_w(\gamma_{SL} - \gamma_{SV})dx + \gamma_{LV}dx \cos \theta^* \quad (I.2)$$

L'équilibre est obtenu pour le minimum de  $E$ . Pour  $r_w = 1$  (solide lisse), cette condition d'équilibre conduit à la relation de Young. Pour  $r_w > 1$ , la relation de Wenzel est obtenue :

$$\cos \theta^* = r_w \cos \theta_Y \quad (I.3)$$

Cette relation décrit deux types de comportement : si  $\theta_Y < 90^\circ$ , alors  $\theta^* < \theta_Y$ , puisque  $r_w > 1$ , et si  $\theta_Y > 90^\circ$ , alors  $\theta^* > \theta_Y$ . Le modèle de Wenzel prédit ainsi que la rugosité a pour effet d'augmenter la mouillabilité apparente d'un système mouillant, et inversement, de diminuer la mouillabilité apparente d'un système non-mouillant.

#### I.2.3.4. Modèle de Cassie-Baxter

Le cas d'une surface solide plane et lisse mais chimiquement hétérogène est maintenant étudiée. La surface considérée ici est constituée de deux espèces différentes (Fig. I.4), caractérisées respectivement par des angles de Young  $\theta_{Y1}$  et  $\theta_{Y2}$ . Les fractions surfaciques occupées par chacune de ces espèces sont respectivement  $\phi_1$  et  $\phi_2$ , telles que  $\phi_1 + \phi_2 = 1$ . Les dimensions des hétérogénéités sont à nouveau supposées très petites par rapport à la taille de la goutte.

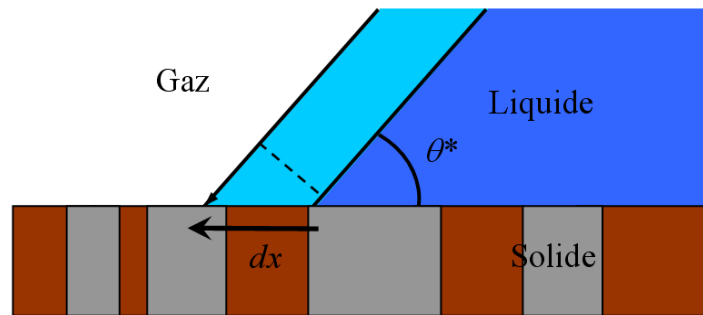


Figure I.4 : Bord d'une goutte sur une surface chimiquement hétérogène [DeG05].

De la même façon que pour le modèle de Wenzel, la variation d'énergie associée à un petit déplacement  $dx$  s'écrit :

$$dE = \phi_1(\gamma_{SL} - \gamma_{SV})_1 dx + \phi_2(\gamma_{SL} - \gamma_{SV})_2 dx + \gamma_{LV}dx \cos \theta^* \quad (I.4)$$

où  $\theta^*$  correspond encore à l'angle de contact apparent. Les indices 1 et 2 renvoient au solide exploré pendant ce déplacement. En prenant le minimum de  $E$  et en utilisant la relation de Young pour chacun des solides, la relation de Cassie-Baxter [Cas44] est obtenue :

$$\cos \theta^* = \phi_1 \cos \theta_{Y1} + \phi_2 \cos \theta_{Y2} \quad (I.5)$$

L'angle apparent obtenu est donc encadré par les angles de Young  $\theta_{Y1}$  et  $\theta_{Y2}$ .

### I.2.3.5. Interfaces composites

Dans le cas d'un système non mouillant ( $\theta_Y > 90^\circ$ ) constitué d'un liquide en contact avec une surface solide rugueuse, le liquide n'épouse pas nécessairement les aspérités de la surface solide, comme cela est supposé implicitement dans la relation de Wenzel. En effet, sous certaines conditions qui seront détaillées plus loin, du gaz peut rester piégé sous la goutte. L'interface entre le liquide et le solide est alors composite [Les04, Cha06a] : partiellement solide-liquide, et partiellement liquide-gaz et solide-gaz.

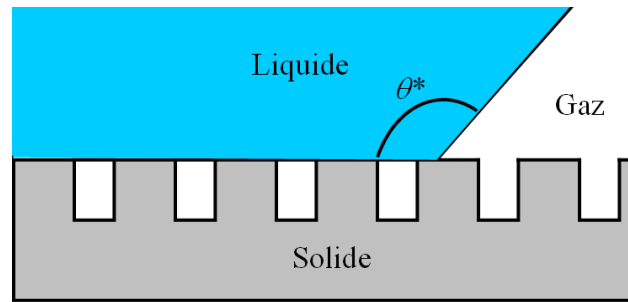


Figure I.5 : Interface rugueuse piégeant du gaz [DeG05].

En présence de ces poches de gaz, le système adopte à nouveau un angle de contact macroscopique qui est l'angle de contact apparent  $\theta^*$ . Bico [Bic02] a utilisé la relation de Cassie-Baxter pour déterminer cet angle dans le cas simple d'une surface solide homogène chimiquement constituée de plots, de trous ou encore de rainures (Fig. I.5) bien définies géométriquement où les interfaces solide-liquide et liquide-gaz sous la goutte sont planes. En identifiant respectivement  $\phi_l$  et  $\theta_{Y1}$  à la fraction surfacique du solide  $\phi_s$  et à l'angle de Young  $\theta_Y$  que fait le liquide sur le solide, et en identifiant respectivement  $\phi_g$  et  $\theta_{Y2}$  à la fraction surfacique du gaz  $1 - \phi_s$  et à l'angle de Young égal à  $\pi$  que fait le liquide sur le gaz, il obtient l'expression :

$$\cos \theta^* = -1 + \phi_s (\cos \theta_Y + 1). \quad (I.6)$$

Dans la réalité, les interfaces liquide-gaz doivent peu s'écarter de la planéité. En effet, la goutte est souvent millimétrique, alors que les motifs de la rugosité sont à l'échelle du micromètre. Comme la pression de Laplace (notion définie à l'annexe 1) doit être constante à l'équilibre et comme elle est imposée par la courbure externe de la goutte, il est acceptable de considérer des interfaces planes [Bic02].

Comme pour la relation de Wenzel, l'angle apparent  $\theta^*$  sur une telle surface est supérieur à l'angle de Young  $\theta_Y$  obtenu sur une surface lisse de même nature. Toutefois, la relation (I.6) décrit un comportement très différent de celui décrit par la relation de Wenzel comme le montre la figure I.6. En effet, pour un système non mouillant et une rugosité donnée, la relation de Wenzel indique que  $\theta^*$  augmente continûment de  $90^\circ$  à  $180^\circ$  lorsque  $\theta_Y$  augmente de  $90^\circ$  jusqu'à une valeur limite maximale :

$$\theta_Y^{\max W} = \arccos\left(-\frac{1}{r_w}\right). \quad (\text{I.7})$$

Tandis que, dès que des poches de gaz sont présentes, la relation de Bico montre une discontinuité en  $\theta_Y = 90^\circ$  où  $\theta^*$  commence à une valeur limite minimale :

$$\theta_{\min B}^* = \arccos(\phi_S - 1). \quad (\text{I.8})$$

pour atteindre  $180^\circ$  en  $\theta_Y = 180^\circ$ .

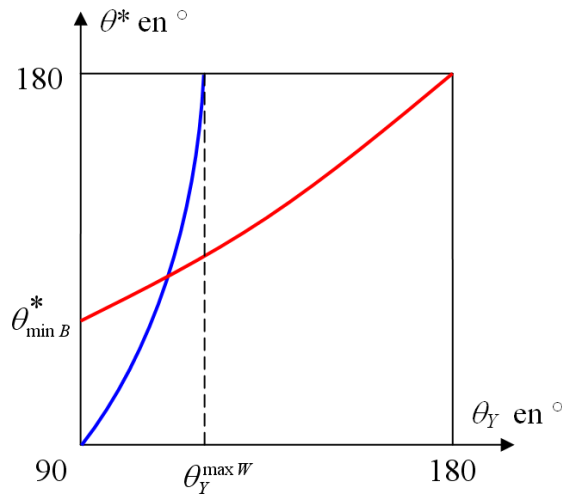


Figure I.6 : Angle de contact apparent en fonction de l'angle de Young, pour un liquide sur une surface rugueuse. La courbe bleue correspond à relation de Wenzel et la courbe rouge à la relation de Bico.

Il existe donc deux mécanismes possibles liés à la rugosité conduisant à une augmentation de la non-mouillabilité apparente du système. Le premier s'applique dans le cas d'une interface complètement solide-liquide et le second dans le cas d'une interface composite. En effet, la rugosité peut directement accroître le caractère non mouillant du système selon la relation de Wenzel. Elle peut aussi conduire au piégeage de poches de gaz sous la goutte. Et là encore, le caractère non mouillant du système est renforcé, notamment pour des angles de Young légèrement supérieurs à  $90^\circ$  comme le montre la figure I.6.

#### **I.2.3.6. Détermination du type d'interface et choix du modèle en fonction de la rugosité**

Dettré et Johnson ont étudié l'effet de la rugosité d'une surface solide supposée chimiquement homogène sur un système non-mouillant. Ils ont pour cela réalisé une expérience fondamentale [Det64] qu'ils ont complétée d'une étude théorique basée sur une surface rugueuse idéalisée : une sinusoïde [Joh64]. Ils ont constaté que la rugosité a une influence considérable à la fois sur l'angle de contact et son hystérésis.

Les résultats de leur expérience ont permis de distinguer deux régimes. Lorsque les angles d'avance et de recul sont supérieurs à l'angle de Young l'interface est composite. Lorsque l'angle d'avance est supérieur à l'angle de Young et que l'angle de recul est sensiblement inférieur à l'angle de Young, l'interface n'est pas composite.

Ils en déduisent que les surfaces peu rugueuses ne piègeraient pas de gaz et obéiraient à la relation de Wenzel, tandis que les surfaces très rugueuses formeraient une interface composite avec le liquide. Ces dernières suivraient alors plutôt l'équation (I.6).

Il est important de remarquer que ce raisonnement ne s'applique qu'aux cas de surfaces solides dont la topographie peut se représenter par une fonction continûment dérivable comme un cosinus. En effet, dans les deux régimes, la loi de Young est localement toujours satisfaite et c'est, en définitive, cette condition qui détermine le régime suivi et donc la loi à appliquer. En effet, comme cela sera détaillé au § I.2.4.1, des profils de rugosité anguleux avec des changements abrupts de pente sont susceptibles de piéger du gaz sans pour autant nécessiter une rugosité importante. En fait,  $r_w$  et  $\phi_s$  sont indépendants [Bic00]. Les deux surfaces schématisées sur la figure I.7 ont par exemple la même fraction  $\phi_s$  mais diffèrent par leur paramètre de rugosité  $r_w$ .

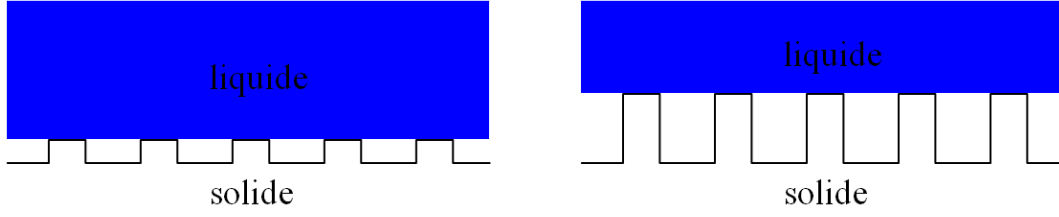


Figure I.7 : Surfaces de même fraction  $\phi_S$  mais de paramètre de rugosité  $r_w$  différente [Bic00].

Par ailleurs, Bico [Bic02] a examiné la stabilité thermodynamique d'une interface composite pour savoir s'il est plus favorable énergétiquement pour le liquide de suivre la rugosité ou de piéger du gaz dans les anfractuosités du solide. En comparant l'énergie associée à un petit déplacement de la ligne de contact dans ces deux cas, il trouve qu'il est favorable de suivre la rugosité si l'angle de Young est compris entre  $90^\circ$  et un certain angle  $\theta_C$  donné par :

$$\cos \theta_C = \frac{\phi_S - 1}{r_w - \phi_S} \quad (I.9)$$

Selon son raisonnement, l'interface composite ne serait donc stable que pour un angle de Young compris entre  $\theta_C$  et  $180^\circ$ . Pour un angle inférieur à  $\theta_C$ , l'interface composite serait dans un état métastable.

#### I.2.4. Conditions pour générer une interface composite

Il s'agit ici de préciser, pour une surface rugueuse, dans le cas d'un système non-mouillant, les critères géométriques à respecter pour que l'interface entre celle-ci et une goutte soit composite. Après avoir précisé les effets des discontinuités de pente de la surface rugueuse, les cas d'une rugosité à géométrie idéale puis celui d'une rugosité réelle sont traités.

##### I.2.4.1. Discontinuités de pente

Johnson et Dettré [Joh69] montrent que les anfractuosités de la surface solide susceptibles de piéger du gaz sont caractérisées par des discontinuités de pente supérieures à  $\pi - \theta_Y$ . L'explication en est donnée dans les paragraphes qui suivent.

Lors du déplacement du liquide sur la surface solide, à l'échelle des hétérogénéités, ou plus précisément à une échelle suffisamment petite pour que l'hystérésis de l'angle de contact soit nulle, la relation de Young s'applique partout sur la surface. Dans son déplacement, le liquide peut rencontrer une hétérogénéité caractérisée par une discontinuité de pente convexe du point de vue du liquide, c'est-à-dire un angle vif, noté  $\varphi$  sur la figure I.8. Lorsque la ligne



de contact atteint cette discontinuité, l'angle de contact par rapport à l'horizontale peut prendre toutes les valeurs comprises entre l'angle de Young  $\theta_Y$  (Fig. I.8.a) et  $\pi - \varphi + \theta_Y$  (Fig. I.8.b). Cet effet est appelé canthotaxie [Bic00].

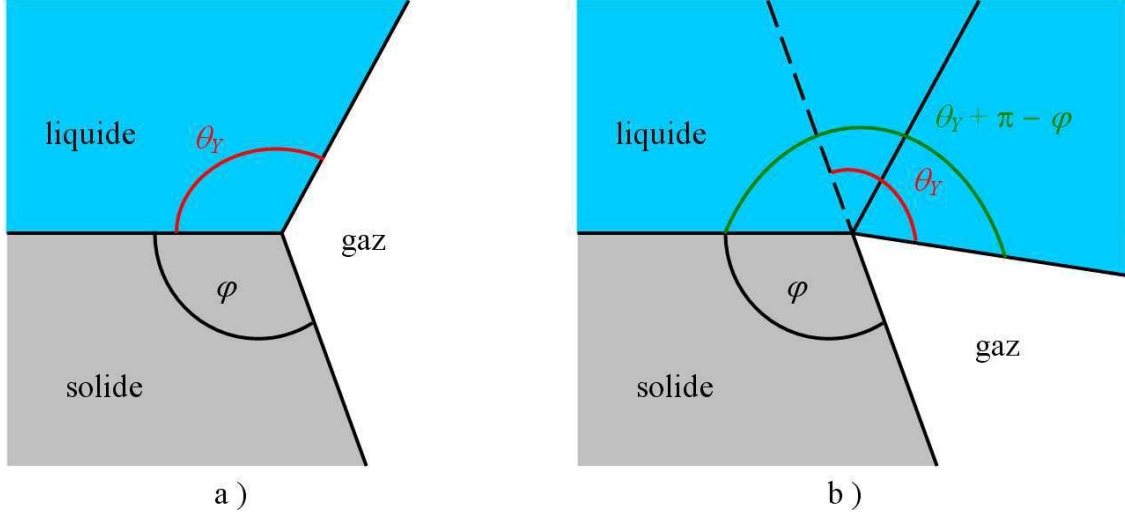


Figure I.8 : Effet de canthotaxie observée à une discontinuité de pente convexe du point de vue du liquide. a) l'angle de contact prend la valeur  $\theta_Y$ . b) l'angle de contact prend la valeur  $\pi - \varphi + \theta_Y$ .

Dans le cas d'un créneau par exemple, comme sur la figure I.5, où  $\varphi$  vaut  $\pi/2$ , l'angle de contact sur cet angle droit peut varier entre  $\theta_Y$  et  $\pi/2 + \theta_Y$ . Comme  $\theta_Y$  est lui-même supérieur à  $\pi/2$  pour un système non-mouillant, l'angle  $\pi$  est une des solutions possibles. Cela justifie d'avoir pu considérer planes, sur la figure I.5, les interfaces liquide-gaz sous la goutte.

Si, dans son déplacement, la ligne de contact atteint cette fois une discontinuité de pente concave du point de vue du liquide, alors cela signifie que l'angle d'inclinaison  $\psi$  de la discontinuité est inférieur à  $\pi - \theta_Y$  (Fig. I.9). Le liquide pourra alors dépasser la discontinuité en conservant partout son contact avec le solide. Il est en effet impossible pour la ligne de contact d'approcher une discontinuité concave dont l'angle d'inclinaison est supérieur à  $\pi - \theta_Y$  à une distance sensiblement inférieure à la longueur capillaire du liquide. La longueur capillaire  $l_c$  [Bou24] représente une échelle de longueur au-delà de laquelle les effets de la gravité deviennent importants par rapport aux effets de la capillarité. Elle se définit comme suit :

$$l_c = \sqrt{\frac{\gamma_{LV}}{\rho g}}, \quad (\text{I.10})$$

avec  $\rho$ , la masse volumique du liquide, et  $g$ , l'accélération de la pesanteur. La taille de la goutte sur laquelle sont généralement faites les mesures d'angle de contact est de l'ordre de la longueur capillaire. Cette longueur capillaire est d'environ 2,7 mm pour l'eau.

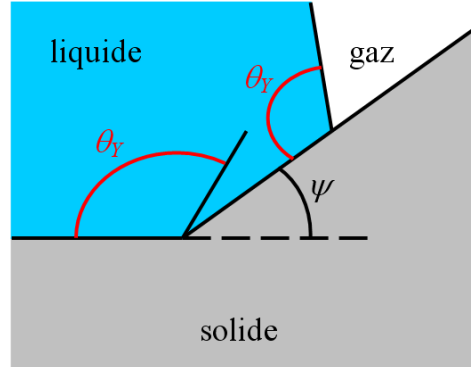


Figure I.9 : Liquide au niveau d'une discontinuité de pente concave du point de vue du liquide telle que  $\psi < \pi - \theta_Y$ .

Il est évident, d'après cette remarque, que si la rugosité de la surface solide comporte des discontinuités de pente dont l'angle d'inclinaison est supérieur à  $\pi - \theta_Y$ , alors l'interface sous une goutte posée sur la surface sera composite.

#### I.2.4.2. Rugosité à géométrie idéale

Il est supposé ici que la rugosité possède une géométrie idéale caractérisée par des crevasses creusées dans une surface plane. Par simplicité, la géométrie de la crevasse est telle que le montre la figure I.10 : elle possède des parois lisses et son demi-angle d'ouverture est noté  $\beta$  (Fig. I.10). En idéalisant quelque peu le remplissage de la crevasse, il apparaît que seules les crevasses dont la largeur est sensiblement inférieure à la longueur capillaire du liquide et telles que l'angle d'avance respecte :

$$\theta_A > \text{constante} \times \beta, \quad (\text{I.11})$$

peuvent piéger du gaz. Il existe des critères supplémentaires à respecter pour obtenir une interface composite dans le cas d'une surface solide immergée dans un volume de liquide. Ils seront précisés au chapitre suivant. La constante est égale à 2 pour une crevasse en forme de rainure de section triangulaire et peut être égale à 1 pour la forme conique [Atc89].

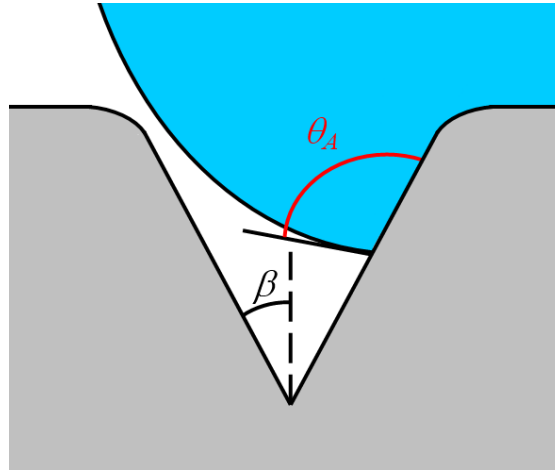


Figure I.10 : Illustration du remplissage initial de la crevasse : la surface du liquide avance avec un angle de contact d'avance  $\theta_A$  [Atc89].

D'après ce raisonnement, de par leur géométrie, les rainures de section rectangulaires (constante = 1 et  $\beta = 0$ ) et les trous cylindriques (constante = 2 et  $\beta = 0$ ) sont susceptibles de piéger du gaz quel que soit la valeur de  $\theta_A$ . Cependant, il sera montré au chapitre suivant que les poches de gaz piégées ne sont pas forcément stables. Leur stabilité dépend en effet de  $\theta_A$ , des conditions de pression et de la teneur (niveau de saturation) en gaz dissous dans le liquide.

Par ailleurs, dans certaines situations comme celle d'une goutte déposée sur une surface dont la rugosité est faite de plots, ou bien encore de rainures de longueur supérieure à la taille de la goutte, le gaz est alors libre de s'échapper lors de la pénétration du liquide dans la rugosité. Dans ce cas, du gaz ne pourra être présent sous la goutte que si l'angle d'avance est tel que :

$$\theta_A \geq \beta + \pi/2. \quad (\text{I.12})$$

Si cette relation n'est vérifiée nulle part dans la zone sous la goutte, alors le liquide épousera parfaitement la surface rugueuse et la loi de Wenzel pourra s'appliquer.

#### I.2.4.3. Rugosité de surfaces réelles

D'après les discussions précédentes sur les cas d'une rugosité à géométrie idéale et les interprétations d'expériences réalisées avec des rugosités aléatoires [Hit81, Riv86, DeJ90a, 90b, 93], la pente des aspérités de la surface en tout point représente le paramètre crucial vis-à-vis du piégeage du gaz. Dans [Hit81, DeJ90a, 90b], le rapport des paramètres  $Ra/\lambda a$  a par exemple été utilisé pour caractériser la rugosité ( $\lambda a$  étant la longueur d'onde moyenne entre les aspérités de la surface). Ce rapport représente une mesure moyenne de la pente des hétérogénéités de la surface.

La rugosité peut être caractérisée par des paramètres normalisés. Cependant, ils semblent insuffisants pour décrire la géométrie locale de la surface. Ils n'offrent qu'une description moyennée sur une longueur (ou surface pour la norme ISO 25178) d'évaluation beaucoup plus grande que les dimensions des motifs élémentaires de la rugosité. En effet, contrairement aux surfaces modèles présentées précédemment, une surface rugueuse réelle possède une distribution aléatoire de pics et de creux dont les pentes sont variables. Une même valeur d'un paramètre de rugosité peut donc caractériser deux surfaces de topologie différente et ceci a une influence sur les valeurs des angles de mouillage [Rup04].

Là-encore, dans le cas où le gaz est libre de s'échapper de l'espace entre le liquide et le solide, l'étude du respect de l'inéquation (I.12) en tout point de la surface permettrait de déterminer les régions où l'interface est composite et celles où le liquide épouse la surface solide. Si le gaz n'est pas libre de s'échapper, il faudrait alors étudier en plus la stabilité des poches de gaz vis-à-vis des conditions de pression et de la teneur en gaz dissous dans le liquide. Cette méthode n'est bien évidemment pas applicable en pratique sauf à connaître parfaitement la topologie et la valeur de l'angle de Young sur toute la surface d'intérêt. Il faudrait aussi connaître les différents paramètres déjà évoqués contrôlant la stabilité des poches de gaz aux endroits où le gaz ne peut s'échapper.

Ainsi, pour une surface à rugosité aléatoire, il est difficile de savoir si l'interface piège du gaz et de connaître la proportion d'interface liquide-gaz sous le liquide puisque les paramètres de rugosité mesurés ne décrivent pas la géométrie locale de la surface réelle. Cependant, il est clair que pour une rugosité dont les pentes des aspérités sont suffisamment douces, c'est-à-dire inférieures à  $\pi - \theta_Y$ , l'interface entre le solide et le liquide sera non composite. Ainsi, si l'on souhaite réduire au maximum la fraction surfacique de gaz à l'interface, il faudra privilégier les traitements de la surface solide permettant de réduire les variations de pente de la rugosité.

### **I.3. Système acier inoxydable austénitique – sodium liquide**

Cette partie a pour but de déterminer les phénomènes intervenant dans le mouillage de l'acier inoxydable austénitique par le sodium liquide. En effet, la nuance 304L, qui est le matériau constitutif du diaphragme des TUSHT, fait partie de cette famille d'aciers. Le mouillage sera étudié sur une gamme de températures allant du point de fusion du sodium, environ 100°C, à la température la plus élevée imposée dans un RNR, 550-600°C, sachant que la température à laquelle un très mauvais couplage acoustique est observé

industriellement est celle imposée lors des contrôles périodiques du réacteur : environ 180°C. Il s'agit dans cette partie d'identifier les différents paramètres contrôlant le mouillage et leur influence respective.

### I.3.1. Le sodium liquide

Le sodium présente des caractéristiques physiques remarquables qui en font un fluide caloporteur bien adapté à l'utilisation dans un RNR [Rod96]. Il possède de nombreux atouts : une large plage de température à l'état liquide (à la pression atmosphérique, température de fusion : 97,8°C et température d'ébullition : 881,4°C), une très bonne conductibilité thermique (100 fois celle de l'eau), une viscosité et une masse volumique à 400°C voisines de celles de l'eau à 20 °C, et une tension de vapeur faible. En plus de la chaleur, le sodium véhicule aussi très bien les ondes acoustiques et l'électricité. Il possède par ailleurs des propriétés paramagnétiques.

Le sodium a aussi des inconvénients. Le sodium métallique est un très fort réducteur. Il s'enflamme spontanément au contact de l'air ou de l'oxygène à partir de 130°C et réagit avec l'eau suivant une réaction exothermique produisant de la soude et de l'hydrogène. Lorsqu'il contient de l'oxygène dissous, le sodium devient corrosif vis-à-vis des aciers austénitiques et ferritiques. Pour limiter ces phénomènes, une purification continue du caloporteur est mise en œuvre. Les règles générales d'exploitation des RNR définissent en effet une concentration en oxygène dissous dans le sodium inférieure à 3 p.p.m. Une concentration supérieure à 5 p.p.m. implique l'arrêt immédiat du réacteur. Enfin, le sodium est complètement opaque. Une inspection des structures sous sodium ne peut donc pas se faire par des méthodes optiques classiques.

Le sodium, comme tous les métaux liquides, présente une tension superficielle élevée qui varie assez peu avec la température :  $\gamma_{LV} \approx 0,19 \text{ J/m}^2$  à 200°C et  $\gamma \approx 0,15 \text{ J/m}^2$  à 550°C. La relation suivante est proposée [Rod96] :

$$\gamma_{LV} = (206,7 - 0,1 \times T) \times 10^{-3} \text{ J/m}^2 \quad (\text{I.13})$$

avec  $T$  la température du sodium en °C. La variation relativement faible de la tension superficielle avec la température et la concentration en oxygène dissous dans le sodium [Add65] ne semble pas pouvoir expliquer les phénomènes observés dans le processus de mouillage [Vui76]. C'est pourquoi, dans la suite, une attention particulière est portée sur l'influence des films surfaciques d'oxydes.

### **I.3.2. Mouillage et stabilité des films surfaciques d'oxydes**

Un film surfacique d'oxydes existe sur les métaux solides et sur les aciers. Les propriétés de ce film, et la nature de son interaction avec le sodium liquide, sont de loin les facteurs les plus importants contrôlant le mouillage [Add84]. Certains chimistes [Smi71, Rou75, Vui76, Add84, Raj95] tentent de prédire la nature de ces interactions par une analyse thermodynamique consistant à évaluer la stabilité des oxydes composant ces films vis-à-vis du sodium. Malheureusement, cette analyse n'est presque jamais complétée d'une étude cinétique permettant de s'assurer que les vitesses de réaction sont significatives.

A priori, comme la thermodynamique est fonction de la température, si le mouillage fait intervenir des réactions chimiques à l'interface, il sera alors nécessairement fonction de la température. Il est donc raisonnable d'étudier la corrélation entre mouillage et type de réaction à la surface. Cependant, il est important de noter que la réactivité d'un oxyde de métal sous la forme d'un film fin (quelques nanomètres d'épaisseur) en contact intime avec le substrat métallique ne peut être évaluée rigoureusement en tenant compte seulement de la stabilité des oxydes.

Lorsqu'un matériau métallique solide est immergé dans du sodium liquide, plusieurs types de réactions peuvent avoir lieu entre le sodium et le film d'oxydes solide présent à la surface du solide, et chaque type donne lieu à différents comportements de mouillage [Add84]. L'analyse thermodynamique permet d'envisager le comportement du sodium vis-à-vis de ces oxydes. Lorsque l'enthalpie libre de formation d'un oxyde de métal est beaucoup moins grande que celle du monoxyde de sodium  $\text{Na}_2\text{O}$  (comme par exemple avec le fer, le cobalt et le nickel), l'oxyde est généralement complètement réduit en métal, et c'est la surface métallique "propre" qui est au contact du sodium. Lorsque l'oxyde de métal et le monoxyde de sodium ont des enthalpies libres similaires, (c'est le cas du chrome, du molybdène et du tungstène), une couche intermédiaire d'oxydes ternaires peut être formée entre le sodium et le métal. Enfin, lorsque le métal solide est capable de prendre de l'oxygène provenant du sodium liquide (c'est le cas du zirconium par exemple) c'est le mouillage de l'oxyde de surface qui est significatif.

### **I.3.3. Mouillage des métaux de transition par le sodium liquide**

Les métaux de transition représentent les principaux éléments d'alliage des aciers inoxydables austénitiques tels que la nuance 304L. Il s'agit donc, dans cette partie, d'identifier le rôle et l'impact de ces éléments sur les propriétés de mouillage des aciers inoxydables.

### I.3.3.1. Observations générales

Les conclusions générales d'Addison [Add84] sur l'influence des conditions et paramètres expérimentaux vis-à-vis du mouillage des métaux de transition par le sodium liquide sont les suivantes :

- Les changements observés de l'angle de contact apparent mesuré  $\theta^*$  avec le temps et la température sont des conséquences directes de la vitesse et de la nature des réactions chimiques s'effectuant entre le sodium et le film d'oxydes sur la surface métallique. Vuillerme [Vui76] en déduit donc que le suivi des variations de l'angle de contact  $\theta^*$  permet de connaître l'avancement de la réduction des oxydes de la surface métallique.
- En l'absence de tout film, le sodium pur s'étalera toujours pour donner  $\theta^* = 0$  sur n'importe quel métal pur solide. Et inversement, la première constatation que fait Vuillerme [Vui76] est que la présence d'un film d'oxydes sur le métal empêche le mouillage immédiat par le sodium liquide. Cela est certainement dû selon lui à la différence des énergies surfaciques des deux phases. Comme l'ont suggéré Livey et Murray [Liv55], une des raisons expliquant la non-mouillabilité des oxydes par le sodium liquide peut être la répulsion mutuelle entre les anions d'oxygène sur la surface d'oxydes et le nuage d'électrons du sodium liquide. Ceux-ci ajoutent que  $\theta^* = 0$  ne peut pas être atteint entre le film d'oxydes et le sodium liquide si ce dernier est incapable de réduire l'oxyde.
- Le comportement de mouillage peut être considérablement influencé par la concentration en oxygène dans le sodium liquide. Ce point sera détaillé plus loin.
- Les métaux de transition, même lorsqu'ils ont été abrasés à l'air jusqu'à un état de surface poli miroir, sont encore recouverts d'un film surfacique d'oxydes invisible. Ce film résulte de l'oxydation à l'air humide à température ambiante. Seules quelques méthodes utilisées comme traitement final sont efficaces pour enlever ce film d'oxydes. Barlow et Planting [Bar69] ont par exemple démontré que le nettoyage par bombardement ionique sous atmosphère d'argon permet une amélioration qualitative du mouillage de certains métaux par le sodium, difficilement mouillables ou non-mouillables avec des préparations normales (traitements mécaniques ou électrochimiques) des échantillons.

Par ailleurs, Jourdan et Lane [Jou66, 67] constatent une caractéristique commune aux métaux qui sont bien mouillés par le sodium (zinc, argent, or, mercure, palladium et platine),

à savoir une solubilité marquée du métal solide dans le sodium. En groupant tous les systèmes étudiés par Jourdan et Lane du point de vue du degré de mouillabilité, une caractéristique commune ressort : la solubilité des métaux du groupe des métaux difficilement mouillés est très faible et bien plus faible que celle du groupe des métaux facilement mouillés. En effet, la solubilité du platine et du palladium dans le sodium est de plusieurs % en masse. Tandis que pour le système sodium-nickel, du groupe des métaux difficilement mouillés, la solubilité est extrêmement faible et avoisine  $10^{-7}$  % en masse. De plus, Weeks et Isaacs [Wee73] montrent que les solubilités du fer, du chrome et du nickel sont très faibles, de l'ordre de quelques ppm, même à 800°C.

### **I.3.3.2. Classement des métaux de transition en trois groupes**

Selon la stabilité des différents oxydes des métaux de transition, trois groupes de métaux peuvent être distingués.

Le premier rassemble les métaux nobles, tels que l'argent, l'or, le mercure, le palladium et le platine, dont les oxydes sont très facilement réduits par le sodium [Add84, Alc94]. Par conséquent, ils exhibent de très bons comportements de mouillage : mouillage complet ( $\theta^* = 0^\circ$ ) et rapide voire immédiat à de très basses températures du sodium, voisines du point de fusion [Jou65, 66, 67, Bar69]. Le fait que les oxydes des métaux nobles soient beaucoup moins stables que  $\text{Na}_2\text{O}$  sur toute la gamme de température peut expliquer le mouillage complet. Le caractère immédiat du mouillage, quant à lui, pourrait avoir pour origine la rapidité de la cinétique de réduction de ces oxydes. Le comportement de mouillage de l'or explique ainsi l'efficacité du dépôt d'or sur le diaphragme des TUSHT qui permet d'obtenir un bon couplage acoustique dès l'immersion des capteurs dans du sodium à 105°C [Duc88]. Il pourrait être aussi intéressant d'examiner la possibilité de remplacer l'or par l'un de ces métaux nobles si le coût du traitement en était réduit.

Le second groupe rassemble les métaux tels que le fer, le nickel, le cobalt dont les oxydes sont assez facilement réduits par le sodium [Add84, Alc94]. Pour ce groupe, le mouillage ( $\theta < 90^\circ$ ) n'est jamais obtenu immédiatement. Le mouillage complet est obtenu en quelques minutes à des températures supérieures à 200-250°C. Il est obtenu lentement, de quelques dizaines de minutes à quelques heures, pour des températures proches de leur "température de mouillage critique" (notion expliquée à l'annexe 2).

Le troisième groupe comprend le molybdène, le tungstène et le chrome. Ces métaux forment des oxydes ternaires qui peuvent être stables en sodium pour une certaine gamme de



températures et de concentrations en oxygène mais ont des caractéristiques de mouillage typiques des métaux du second groupe pour lesquels il existe une température de mouillage critique [Add84].

Il est important de signaler que le fer, le cobalt, le nickel et le chrome représentent les principaux constituants (voir tableau I.1) des aciers inoxydables austénitiques tels que les nuances 304L, 316L et M316. Le fer, le cobalt et le nickel font partie du second groupe et le chrome fait partie du troisième groupe. A l'annexe 2, une synthèse bibliographique sur le comportement de mouillage de ces métaux est reportée et des notions importantes, telles que la température de mouillage critique, sont introduites.

	C	Cr	Fe	Ni	Co	Mn	Si	P	Cu	N	Ti	Al	Zr	B	Mo	S
304L	0,03 max	17/20	~65,0	10/12,5	-	2,0 max	1,0 max	0,045 max	-	-	-	-	-	-	-	0,03
M316	0,04	17,5	64,0	14,0	0,015	1,7	0,3	0,014	0,03	0,03	0,01	0,005	0,01	0,0015	2,5	-
316L	0,03 max	16/18 max	~65,0	10/14	-	2,0 max	1,0 max	0,045 max	-	-	-	-	-	-	2/3	-

Tableau I.1 : Composition des nuances d'aciers M316, 316L [Hod76] et 304L [Che99].

### I.3.4. Mouillage de l'acier inoxydable austénitique par le sodium

Dans ce qui suit, l'influence des différents facteurs qui agissent sur le comportement de mouillage de l'acier inoxydable par le sodium est discutée. Ces facteurs sont les suivants:

- la rugosité de la surface, (cf § I.2 sur le cas général)
- la température du système qui contrôle la thermodynamique et la cinétique des réactions chimiques de surface ainsi que la tension superficielle du sodium et la solubilité du gaz inerte,
- le temps associé à l'évolution de la réaction chimique d'interface et à la diffusion du gaz qui peut être piégé entre l'acier et le sodium dans le cas d'une interface composite,
- la composition du film d'oxydes à la surface de l'acier et donc par voie de conséquence la composition de l'acier et en particulier sa teneur en chrome,
- la concentration en oxygène dissous dans le sodium,
- l'épaisseur de ce film d'oxydes, sa composition, sa structure, etc.
- la teneur en gaz inerte (argon dans la plupart des cas) dissous dans le sodium,
- la propreté de la surface de l'acier (présence de contaminants à la surface tels que graisse, gaz adsorbés, humidité, poussières).

L'effet des deux derniers facteurs cités n'est pas étudié dans ce chapitre. L'effet de la teneur en gaz inerte dissous dans le sodium sera évoqué au chapitre suivant.

### I.3.4.1. Influence de la température sur des temps courts

Hodkin et ses associés [Hod73, 74, 76] ont étudié le comportement de mouillage de divers aciers, dont les nuances 316L et M316, grâce à la technique de la goutte sessile. Leurs résultats montrent que le comportement de mouillage diffère entre les températures basses et élevées. Les cas du mouillage dans des temps courts (quelques minutes) de surfaces polies mécaniquement en 316L et M316 par du sodium contenant 20 ppm d'oxygène est illustré au tableau I.2 et à la figure I.11. A basse température (inférieure à 300°C), le sodium est apparemment inerte et non-mouillant ( $\theta^* > 90$ ), tandis qu'à température élevée il mouille de manière irréversible. La transition d'un régime à l'autre se produit à environ 300°C. Un excellent mouillage, défini par  $\theta^* \leq 20^\circ$ , n'est pas atteint à une température inférieure à 550°C. Il est intéressant de remarquer que l'allure des courbes des nuances d'aciers 316L et M316 (Fig. I.11) est très semblable à celle du chrome (Fig. A1.1).

$Ra$ en $\mu m$	$\theta^*$ à ~ 160°C	Température en °C à laquelle		
		le comportement de mouillage change	$\theta^* = 90^\circ$	$\theta^* = 20^\circ$
0.033	146	280	310	560

Tableau I.2 : Comportement de mouillage par du sodium contenant 20 ppm d'oxygène de l'acier 316L. [Hod76]

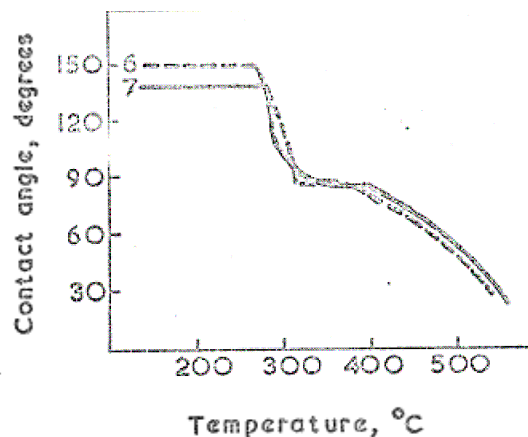


Figure I.11 : Comportement de mouillage des nuances 316L (courbe 6) et M316 (courbe 7) par le sodium vis-à-vis de la température. [Hod76]

Addison *et al.* [Add68] ont attribué le changement de comportement de mouillage entre basse et haute températures à l'influence des réactions chimiques à l'interface entre le sodium et le film d'oxydes présent sur tous les aciers.

### I.3.4.2. Influence du couple temps - température

Hodkin et ses associés [Hod73] ont regardé l'influence du couple temps/température pour la nuance d'acier 316 (17% Cr, 12% Ni, 2,5% Mo). Comme l'illustre la figure I.12, le temps nécessaire pour obtenir un excellent mouillage ( $\theta^* \approx 20^\circ$ ) diminue avec la température. Si la température du sodium est supérieure à 370°C, un excellent mouillage est obtenu en moins de 20 heures. Si la température du système se situe entre 320 et 370°C, un excellent mouillage est possible mais au bout d'un temps qui peut être beaucoup plus long. Il semblerait, à partir de ces données, qu'à une température inférieure à 300°C, un excellent mouillage ne se produise jamais, quelle que soit la durée de l'opération.

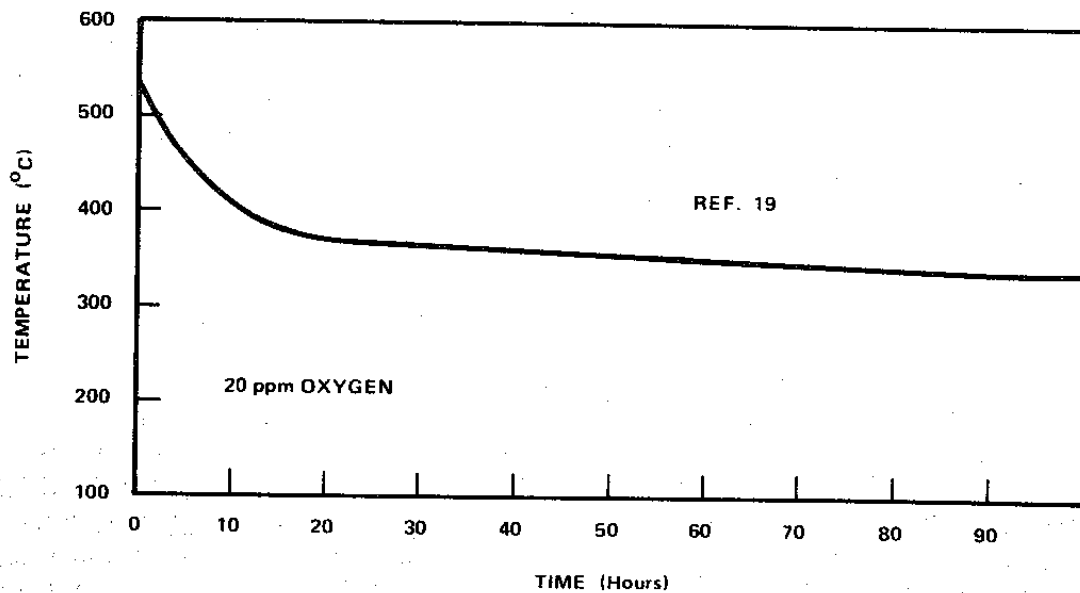


Figure I.12 : Température en fonction du temps pour atteindre un mouillage excellent de l'acier 316. [Hod73]

Une explication de cet effet est que la surface métallique est initialement couverte par un film d'oxyde dont la réduction chimique par le sodium est lente et détermine probablement la vitesse du processus de mouillage. La cinétique de réduction dépend de la température et de la nature de l'oxyde de surface. L'influence de second paramètre est examinée au paragraphe suivant.

En résumé, les plages de température à retenir concernant le comportement de mouillage du système acier inoxydable 316/sodium sont les suivantes :

- non-mouillage permanent : température du sodium < 300°C,
- mouillage immédiat : température du sodium > 530°C environ.

#### **I.3.4.3. Influence de la constitution du film d'oxydes : teneur en chrome**

Selon Rousseau et Riggi [Rou75], la composition des oxydes de surface est fixée par la composition de l'acier lui-même. Or Longson et Prescott [Lon73] font remarquer que le comportement de mouillage de l'acier inoxydable de type M316 est assez différent de celui du fer et du nickel pur. En effet, contrairement aux cas du fer et du nickel, l'angle de contact n'est jamais inférieur à 30° même au bout d'un temps très long. De plus, la vitesse de diminution de l'angle de contact n'augmente pas avec la teneur en oxygène du sodium et dans certaines expériences l'addition d'oxygène induit l'effet opposé. Addison [Add84] en déduit alors que la seule propriété de l'acier de type 316 susceptible de contribuer à ce comportement de mouillage est sa teneur en chrome. La valeur importante de l'angle de contact à l'équilibre suggère que c'est un film d'oxyde, plutôt qu'un métal propre, qui est partiellement mouillé par le sodium. Il est rappelé que le chrome forme un oxyde ternaire  $\text{NaCrO}_2$  qui n'est pas réduit par le sodium à basse température.

La nature du processus chimique impliqué n'est pas clairement identifiée mais la corrélation entre composition de l'acier et comportement de mouillage montre que le chrome joue un rôle significatif [Hod74].

#### **I.3.4.4. Influence de l'épaisseur du film d'oxydes**

La surface des aciers inoxydables est recouverte d'un film d'oxydes (Fig. I.13) dit film passif protecteur pratiquement imperméable et non poreux d'une épaisseur de plusieurs dizaines d'angströms [Rab71] constitué principalement d'oxydes de fer et de chrome [LeB00]. Les films formés par passivation électrolytique, traitement couramment employé dans la fabrication de structure en acier inoxydable, ont une épaisseur généralement comprise entre 1 et 10 nm [LeB00].

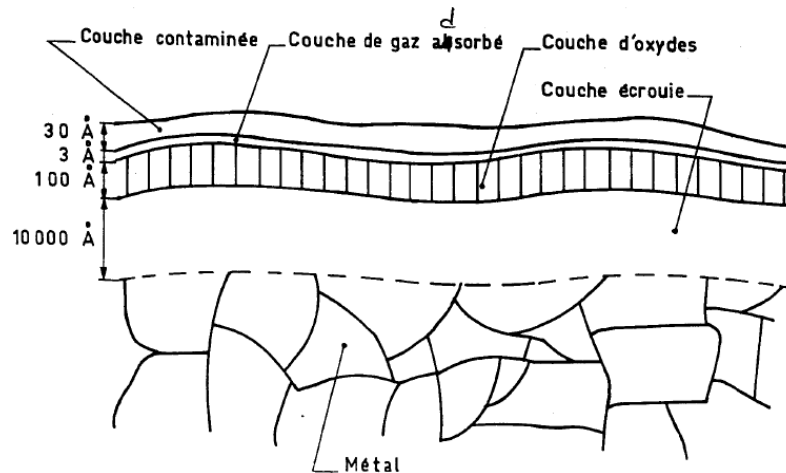


Figure I.13 : Représentation schématique d'une surface d'acier inoxydable. [Rou75]

Il est important de remarquer que l'épaisseur de ce film d'oxydes est très inférieure aux dimensions caractéristiques de la rugosité (de l'ordre de quelques  $\mu\text{m}$ ). Ceci signifie qu'une réduction de ce film d'oxydes par le sodium liquide n'entraînerait pas une diminution de la rugosité puisque le film d'oxydes suit le profil de rugosité.

Comme le montre le tableau I.3, l'augmentation de l'épaisseur du film d'oxydes sur les surfaces des substrats de 316L, réalisée par pré-oxydation à  $700^\circ\text{C}$ , tend à augmenter les angles de contact à basse température mais aussi légèrement la température à laquelle le mouillage se produit [Hod76].

Durée d'oxydation à $700^\circ\text{C}$ en heures	Epaisseur du film estimée en angströms	$\theta^*$ en $^\circ$ à $\sim 160^\circ\text{C}$	Température en $^\circ\text{C}$ à laquelle		
			le comportement de mouillage change	$\theta^* = 90^\circ$	$\theta^* = 20^\circ$
0,1	78	131	280	350	500
1	118	133	320	340	510
10	390	160	220	375	520

Tableau I.3 : Influence de l'épaisseur du film d'oxydes, contrôlée par pré-oxydation à  $700^\circ\text{C}$  pendant diverses durées, sur le comportement de mouillage de l'acier 316L. [Hod76]

#### I.3.4.5. Influence de la concentration en oxygène dissous dans le sodium

Selon Hodkin et Nicholas [Hod76], plus la concentration en oxygène dissous dans le sodium est importante, plus la formation des films surfaciques est favorisée, et plus  $\theta^*$  est élevé à basse température (inférieure à  $250^\circ\text{C}$ ). Par ailleurs, d'après Longson et Prescott [Lon73], la vitesse de diminution de  $\theta^*$  n'augmente pas avec la concentration en oxygène du sodium, contrairement au cas du fer et du nickel, et dans quelques expériences l'addition d'oxygène provoque même l'effet inverse.

En conclusion, la mouillabilité à basse température s'améliorera si la concentration en oxygène dissous dans le sodium diminue [Hod76]. Il serait intéressant d'étudier ce comportement grâce à une expérience de mouillage en sodium où la concentration en oxygène dissous dans le sodium serait contrôlée et mesurée. Celle-ci permettrait d'observer si le mouillage ( $\theta^* < 90^\circ$ ) de l'acier 304L peut être obtenu à une température inférieure à  $300^\circ\text{C}$ , voire à une température avoisinant les  $180^\circ\text{C}$ , lorsque la concentration diminue.

#### **I.3.4.6. Interprétation par la thermodynamique chimique**

Plusieurs oxydes peuvent se trouver à la surface d'un acier inoxydable austénitique. Les principaux sont l'oxyde de chrome  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ , l'oxyde de nickel  $\text{NiO}$ , les oxydes de fer, mais aussi des spinelles et des hydroxydes (plus de détails sont fournis dans [LeB00]).

Les oxydes ternaires connus  $\text{NaNiO}_2$  et  $\text{Na}_2\text{NiO}_2$  sont réduits par le sodium liquide. L'oxyde ternaire  $\text{Na}_4\text{FeO}_3$  n'a été observé que dans du sodium saturé en oxygène. Le composé  $\text{NaFeO}_2$  est réduit à  $260^\circ\text{C}$ . En revanche, la chromite  $\text{NaCrO}_2$  est stable à presque tout niveau d'oxygène. La chromite  $\text{NaCrO}_2$  serait donc le seul oxyde stable dans du sodium à faible concentration en oxygène et à une température supérieure à  $260^\circ\text{C}$  [Add84].

Rousseau et Riggi [Rou75] appliquent alors au 304L le même raisonnement que celui fait pour le chrome (cf. annexe 2) et expliquent alors que le mouillage du 304L apparaît à environ  $100^\circ\text{C}$  de moins que celui du chrome. Le mouillage de l'acier 304L serait lié à l'absence de formation de la chromite de sodium et à la réduction des oxydes de chrome lorsque la température est suffisamment élevée.

Une autre interprétation basée sur le raisonnement d'Addison [Add84] consiste à considérer le cas opposé. C'est-à-dire que le mouillage de l'acier inoxydable serait lié à la réaction de surface menant à la formation de chromite mais aussi de chrome, ce dernier étant responsable de l'amélioration du mouillage. Dans ce cas, le passage d'un comportement non-mouillant à un comportement mouillant dépendrait de la cinétique de cette réaction de surface. Cette cinétique serait très lente pour des températures inférieures à la température de mouillage du chrome.

Là encore, le manque d'informations concernant la cinétique de mouillage du chrome et de l'acier et l'influence de la teneur en oxygène du sodium ne permet pas de conclure sur la validité de ces deux raisonnements.

#### **I.3.4.7. Influence de divers traitements de surface sur le mouillage**

Les traitements de surface peuvent influencer sur la propreté de la surface de l'acier, la rugosité de la surface, la nature du film d'oxydes à la surface de l'acier, et l'épaisseur de ce film d'oxydes.

Les divers traitements de surface étudiés lors du programme expérimental mené par Hodkin et Nicholas [Hod76] ont eu plus ou moins d'effet sur le comportement de mouillage des aciers inoxydables. Les données obtenues dans ce programme sont insuffisantes pour permettre de généraliser, mais il semble que les effets observés soient plutôt dus aux changements de la composition des films surfaciques plutôt qu'à l'érosion des aspérités de la surface. De manière générale, les méthodes permettant de diminuer la rugosité induisent une diminution de l'angle de contact pour des températures inférieures à 250°C. Les méthodes qui consistent à diminuer l'épaisseur du film d'oxydes ont, quant à elles, l'avantage de diminuer le temps nécessaire pour obtenir le mouillage à des températures supérieures à 400-500°C. Le bombardement ionique est l'une de ces méthodes, et elle permettrait même, semble-t-il, d'enlever complètement la couche d'oxydes afin d'obtenir un mouillage immédiat [Bar69]. Il pourrait être intéressant d'examiner la faisabilité de l'application industrielle de ce procédé au traitement du diaphragme des TUSHT.

### **I.4. Système équivalent silicium hydrophobe – eau**

L'interface silicium hydrophobe – eau est considérée car, par la suite, des expériences "équivalentes" en immersion dans l'eau seront réalisées. En effet, l'expérimentation en sodium, dans des conditions représentatives de celles du réacteur, nécessite de disposer d'installations expérimentales élaborées (contrôle de la chimie du sodium, régulation de température, etc...). Ce qui implique des durées de mise en œuvre et des contraintes réglementaires d'exploitation incompatibles avec les besoins, la réactivité nécessaire et le planning d'une thèse. C'est pour cette raison qu'un système non-mouillant équivalent au système acier 304L - sodium liquide a été utilisé.

Cette équivalence a seulement pour but de simuler en eau le caractère non-mouillant du système 304L - sodium et non son comportement physicochimique complexe. Cette équivalence entre les deux systèmes non-mouillants revient en fait à s'intéresser uniquement au cas du non-mouillage permanent de l'acier inoxydable observé pour une température du sodium liquide inférieure à 300°C (cf. § I.3.4.2). En effet, il est très probable qu'à ce niveau

de température le sodium ne réagisse pas ou pratiquement pas avec le film d'oxydes de l'acier. Par conséquent, l'état physicochimique de l'interface est supposé invariant au cours du temps. Il faudra donc, dans la mesure du possible, s'assurer que l'état physicochimique de l'interface "équivalente" en eau le soit aussi.

Le matériau solide choisi pour le système équivalent en eau est le silicium car il est possible de modéliser la géométrie de sa rugosité par des procédés spécifiques. En outre, il est possible de greffer à sa surface une fine couche hydrophobe de façon à obtenir un système non-mouillant avec l'eau. Ainsi, lorsque cette surface à rugosité contrôlée est mise en contact avec de l'eau, la fraction surfacique de gaz piégé à l'interface solide - liquide est connue.

### **I.4.1. Les échantillons**

Les échantillons décrits ici seront utilisés pour des expériences de mouillage dans la suite de ce chapitre, et pour des expériences ultrasonores en eau dans les chapitres suivants. Un des objectifs de l'expérience ultrasonore principale, décrite dans le dernier chapitre, est de quantifier l'influence de divers paramètres de l'interface composite sur la transmission des ultrasons. Les paramètres principaux sont la fraction surfacique de gaz et la taille des poches de gaz. Pour limiter le nombre d'échantillons (en raison du coût de fabrication élevé) au strict nécessaire tout en répondant à un programme expérimental le plus riche possible, les plages de variation des paramètres ont été soigneusement délimitées. Les critères de sélection de ces gammes seront expliqués.

Ils sont en silicium d'orientation cristallographique [100]. Deux échantillons, appelés "échantillons de référence", sont lisses sur les deux faces ( $Ra < 1$  nm). Ils serviront en effet de base de comparaison pour les résultats obtenus avec les autres. Les autres possèdent tous une rugosité idéale faite de rainures ou de trous cylindriques gravés sur une seule de leurs deux faces (initialement lisse, elle aussi, avant la gravure). La gravure est réalisée par la méthode de lithographie et RIE (Reactive Ion Etching) utilisant des masques. Les échantillons sont ici classés et présentés suivant leur épaisseur puis leur motif de rugosité : deux épaisseurs et trois motifs différents sont utilisés. Les échantillons "fins" ont été utilisés lors d'expériences ultrasonores antérieures [Les04, Moy05] et sont utilisés aussi dans les expériences ultrasonores des chapitres suivants. L'utilisation d'échantillons "épais" permet de disposer d'un temps de vol de l'onde dans l'épaisseur de l'échantillon beaucoup plus important. Les échos successifs faisant des allers-retours entre les deux interfaces de l'échantillon peuvent ainsi être séparés au lieu de se superposer comme c'est le cas pour les échantillons fins.



### I.4.1.1. Les échantillons fins

Les échantillons fins sont des plaquettes (wafers) à peu près rectangulaire de dimensions  $40 \times 50 \text{ mm}^2$ . Leur épaisseur est de  $525 \mu\text{m}$ , ce qui correspond à une épaisseur standard pour des wafers en silicium utilisés en microélectronique. Ces échantillons fins sont caractérisés par deux types de motifs.

#### I.4.1.1.1. Les échantillons à rainures

Les échantillons à rainures sont au nombre de sept. La rugosité idéale de la face gravée se présente sous la forme d'un réseau périodique de rainures régulièrement espacées d'une distance  $e$  (Fig. I.14). Les techniques de gravure utilisées permettent de fabriquer des rainures uniquement en forme de créneaux, c'est pourquoi les rainures sont de section rectangulaire. Leur largeur  $2r$  est de  $20 \mu\text{m}$  et leur profondeur  $h$  de  $30 \mu\text{m}$ . La fraction de surface non gravée est notée  $\tau$ , les rainures occupant une fraction surfacique apparente égale à  $1 - \tau$ . Les caractéristiques géométriques de la rugosité de ces échantillons sont données au tableau I.4.

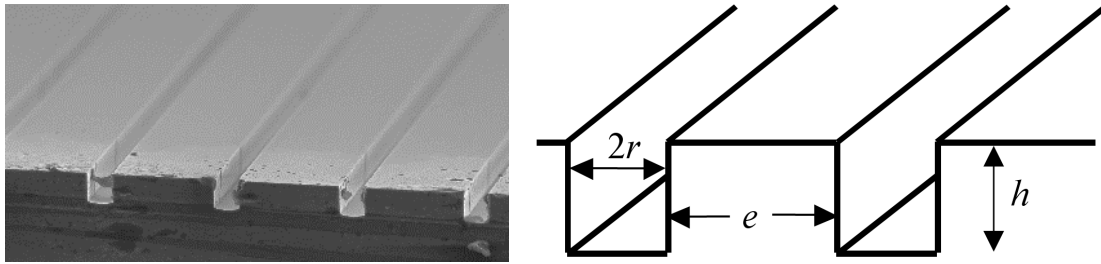


Figure I.14 : a) Photographie au MEB de la face gravée d'un substrat [Moy05]. b) Vue en perspective isométrique de la surface de l'échantillon comportant un réseau périodique de rainures de section rectangulaire de largeur  $2r$  et de profondeur  $h$ , parallèles entre elles et espacées d'une distance  $e$ .

	$2r$ ( $\mu\text{m}$ )	$e$ ( $\mu\text{m}$ )	$\tau$
Echantillon de référence	-	-	1
Echantillon R1	20	200	0,90
Echantillon R2	20	90	0,82
Echantillon R3	20	53,33	0,72
Echantillon R4	20	35	0,64
Echantillon R5	20	24	0,54
Echantillon R6	20	16,66	0,45
Echantillon R7	20	11,42	0,36

Tableau I.4 : Caractéristiques géométriques de la rugosité des échantillons fins à rainures et de l'échantillon de référence fin. [Moy05]

#### I.4.1.1.2. Les échantillons à trous

Seuls deux échantillons fins à trous seront utilisés (Fig I.15). La rugosité idéale de la face gravée se présente sous la forme d'un réseau périodique de trous cylindriques dont la maille élémentaire est un triangle isocèle de base  $b_T$  et de hauteur  $h_T$ , à ne pas confondre avec la profondeur des trous  $h$  (Fig. I.16).

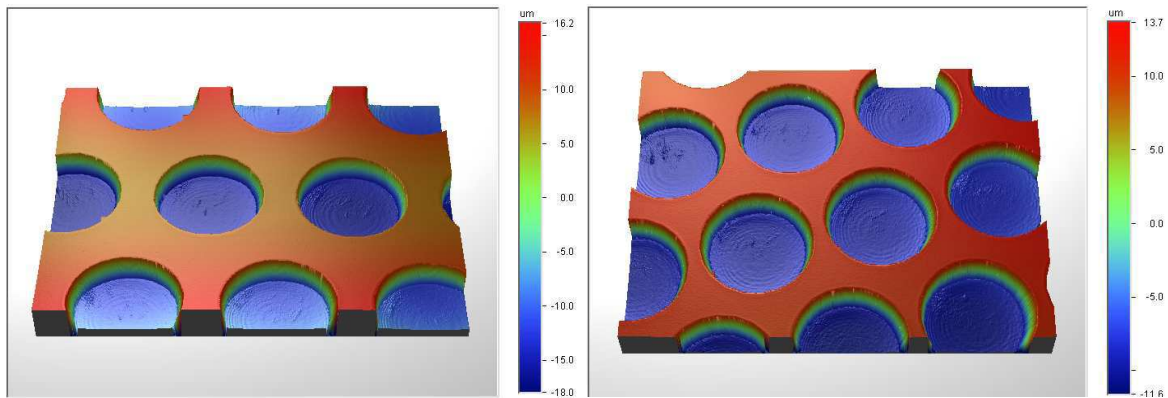


Figure I.15 : Images profilométriques de l'échantillon T1 à gauche, et de l'échantillon T2 à droite (profilométrie réalisée par J. Conti, CRMM). L'échelle de couleur est indiquée en  $\mu\text{m}$ .

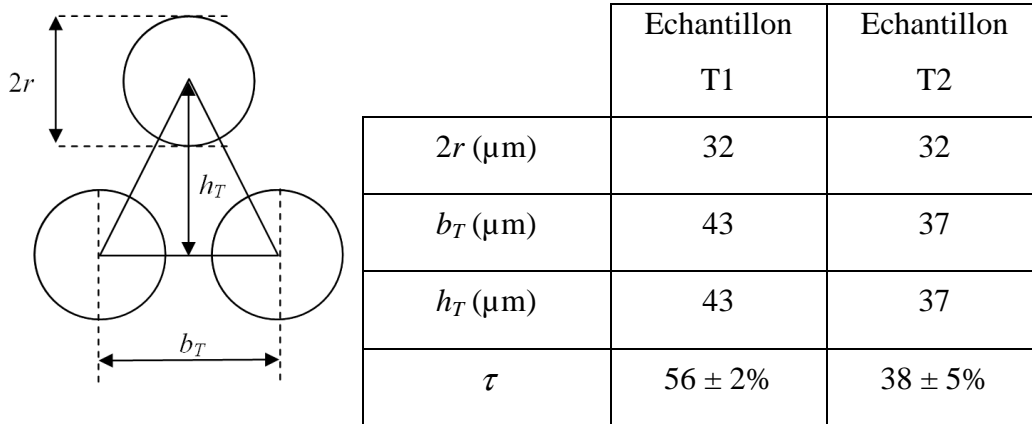


Figure I.16 : A gauche : maille élémentaire du réseau de trous. A droite : caractéristiques géométriques de la rugosité des échantillons fins à trous.

#### I.4.1.2. Les échantillons épais

Les échantillons, au nombre de 14, sont des disques de 100 mm de diamètre (Fig. I.17.a) et d'épaisseur  $L = 10$  mm, qui est l'épaisseur maximale pour laquelle les procédés de lithographie optique et gravure RIE sont réalisables. La rugosité contrôlée est caractérisée par un réseau hexagonal de trous cylindriques identiques (Fig. I.17.b et I.18) dont le diamètre,  $2r$ , et la profondeur,  $h$ , peuvent varier suivant les échantillons (5, 10 ou 15  $\mu\text{m}$  environ pour  $r$  et 10 ou 30  $\mu\text{m}$  environ pour  $h$ ). L'écartement entre les trous est variable suivant les échantillons.

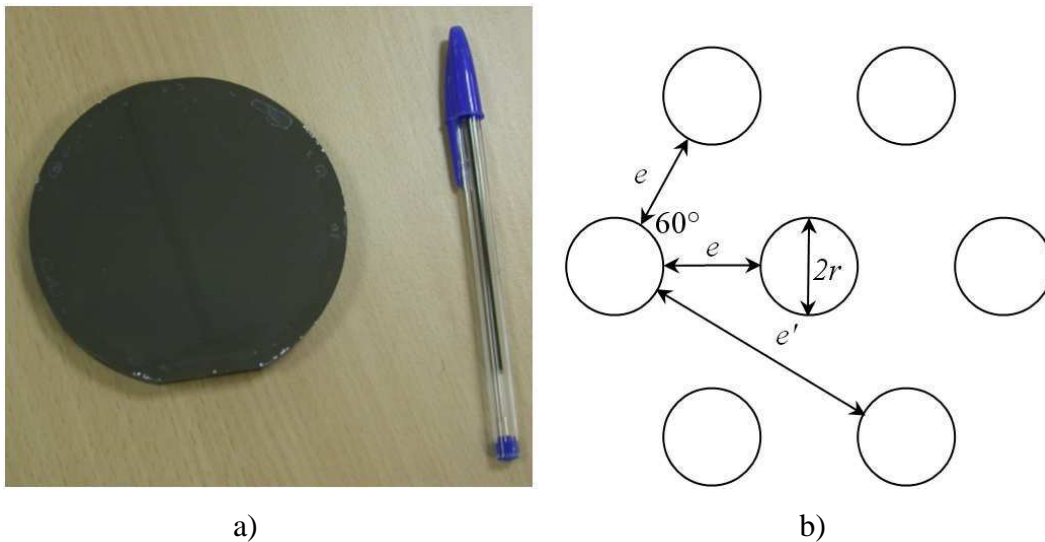


Figure I.17 : A gauche : Photographie de la face gravée d'un échantillon épais. A droite : schéma d'un réseau hexagonal de trous cylindriques. La distance  $2r$  correspond au diamètre des trous cylindriques et la distance  $a$  à l'entraxe entre deux trous.

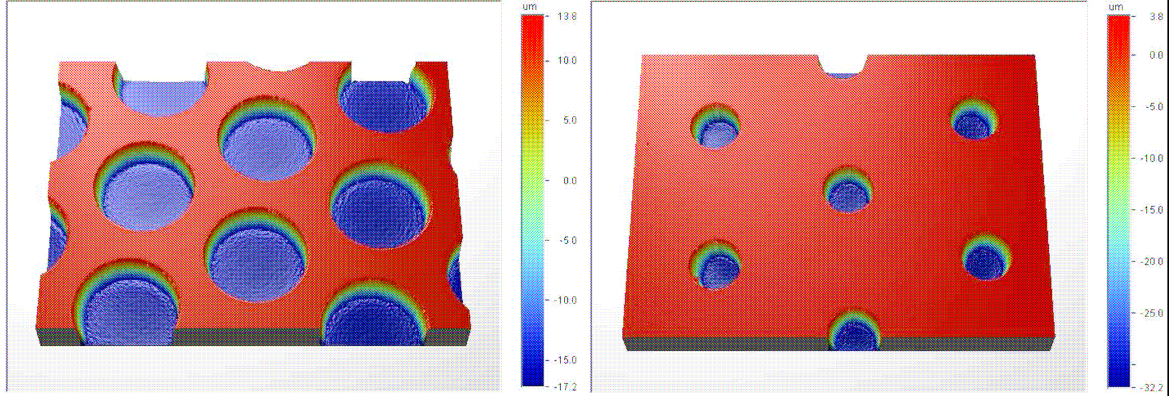


Figure I.18 : Images profilométriques de l'échantillon E3 à gauche, et de l'échantillon E12 à droite (profilométrie réalisée par J. Conti, CRMM).

Pour tous les échantillons étudiés, la maille élémentaire du réseau hexagonal des échantillons est un triangle équilatéral (Fig. I.17.b). La fraction de surface non gravée  $\tau$  est calculée par l'intermédiaire de la fraction surfacique apparente des trous  $\phi_T = 1 - \tau$ .  $\phi_T$  est égale au rapport entre la surface des portions de disques inscrits dans la maille  $\pi r^2/2$  et la surface de la maille  $(\sqrt{3}/4)(2r + e)^2$ . Le calcul donne ainsi :

$$\tau = 1 - \phi_T = 1 - \frac{\pi}{2\sqrt{3}} \left( \frac{2r}{2r + e} \right)^2. \quad (\text{I.14})$$

Le tableau I.5 récapitule les caractéristiques géométriques des différents échantillons. Ce tableau donne les valeurs moyennes de chaque grandeur ainsi que les incertitudes associées obtenues. La moyenne et l'écart type (permettant de calculer l'incertitude) sont obtenus en effectuant, à partir des images profilométriques, 10 mesures à différents endroits pour chaque échantillon. Il est important de noter que la gamme de variation de  $\tau$ , de 50 à 90 % environ, a été choisie de façon à couvrir une plage pertinente autour de 70 %. Cette valeur (correspondant ici à  $1 - \phi_G$ ) avait en effet été identifiée par Lesueur [Moy05] comme étant la frontière entre deux régimes de transmission ultrasonore. Cette remarque sera explicitée au dernier chapitre.

	$2r$ ( $\mu\text{m}$ )	$e$ ( $\mu\text{m}$ )	$e'$ ( $\mu\text{m}$ )	$h$ ( $\mu\text{m}$ )	$\tau$ (%)
Echantillon de référence	-	-	-	-	1
Echantillon E1	$8,4 \pm 0,5$	4,9	14,5	$29,3 \pm 8,5$	$64 \pm 4$
Echantillon E2	$19,2 \pm 0,6$	6,9	26,0	$27,9 \pm 1,1$	$51 \pm 3$
Echantillon E3	$28,9 \pm 1,4$	10,3	39,0	$28,5 \pm 2,3$	$51 \pm 3$
Echantillon E4	$10,6 \pm 0,6$	6,9	19,8	$27,0 \pm 0,9$	$67 \pm 2$
Echantillon E5	$18,9 \pm 0,8$	16,1	41,7	$29,5 \pm 1,1$	$73 \pm 2$
Echantillon E6	$28,7 \pm 0,8$	23,6	61,8	$32,2 \pm 3,5$	$73 \pm 2$
Echantillon E7	$10,2 \pm 1,5$	11,5	27,4	28,0	$80 \pm 5$
Echantillon E7bis	$10,6 \pm 0,5$	11,0	26,8	$10,7 \pm 0,9$	$78 \pm 2$
Echantillon E8	$19,2 \pm 1,8$	24,0	55,6	$30,2 \pm 3,3$	$82 \pm 2$
Echantillon E9	$30,9 \pm 1,4$	34,8	82,8	$31,5 \pm 2,6$	$80 \pm 1$
Echantillon E10	$10,9 \pm 0,4$	18,5	40,0	$30,5 \pm 3,2$	$88 \pm 1$
Echantillon E11	$19,9 \pm 1,2$	38,3	80,9	$32,0 \pm 2,3$	$89 \pm 1$
Echantillon E12	$29,0 \pm 1,9$	58,1	121,8	$31,9 \pm 1,2$	$90 \pm 1$

Tableau I.5 : Tableau récapitulatif des caractéristiques géométriques des différents échantillons

Les échantillons vierges (sans gravure) sont fabriqués par la société SILTRONIX. Le Laboratoire d'Analyse et d'Architecture des Systèmes (LAAS) à Toulouse réalise les masques pour les lithographies optiques. L'Institut d'Electronique Fondamentale (IEF) à Paris réalise les lithographies optiques ainsi que les gravures profondes RIE (Reactive Ion Etching) à partir des masques.

#### I.4.2. Le traitement hydrophobe

Pour simuler en eau le comportement non-mouillant du sodium liquide vis-à-vis de l'acier, les surfaces solides en silicium doivent être hydrophobes. Du fait de son exposition à l'air, le silicium est recouvert d'une fine couche d'oxyde  $\text{SiO}_2$ . Le système eau -  $\text{SiO}_2$  étant mouillant, l'interface ne piège pas de gaz. Pour obtenir une interface composite, la surface des échantillons doit être traitée chimiquement de façon à la rendre hydrophobe.

Le traitement des échantillons est effectué au Centre de Recherche de Modélisation Moléculaire (CRMM) de Mons en Belgique. Une couche très fine (environ 20 Angstroms) d'octadécyltrichlorosilane (OTS) est greffée sur la surface des échantillons par un procédé utilisé en phase liquide [Brz94, Sem99]. Le système échantillon traité - eau est ainsi non-mouillant ( $\theta_Y > 90^\circ$ ). Les échantillons sont examinés après traitement par analyse profilométrique au CRMM afin de vérifier les dimensions caractéristiques des trous et de s'assurer que la couche d'OTS greffée n'a pas modifié l'état de surface de la face gravée.

### I.4.3. Mesures d'angles de contact

Le CRMM a effectué des mesures d'angle de contact par la méthode de goutte posée. Des gouttes d'eau milliQ (eau ultrapure : déminéralisée et sans ions) ont été déposées sur la face rugueuse des échantillons épais ainsi que sur une des deux faces lisses de l'échantillon de référence épais (Fig. I.19). Ces mesures visent à vérifier l'hydrophobie du greffage OTS réalisé sur tous les échantillons. Ces mesures donnent l'angle de contact  $\theta^*$  moyen et l'écart type associé (tableau I.6) obtenus en faisant la moyenne sur 20 mesures de la moyenne entre l'angle mesuré à gauche et celui mesuré à droite de la goutte.

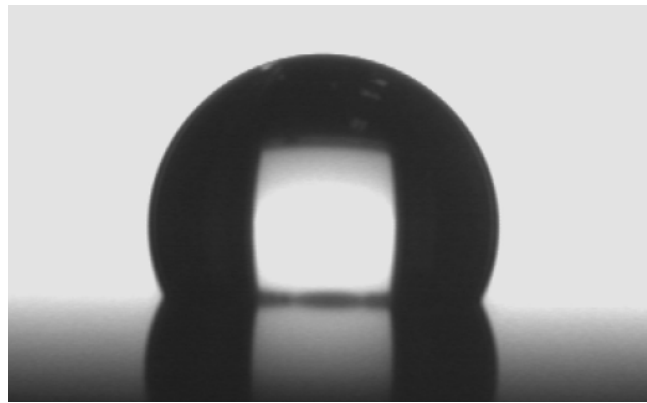


Figure I.19 : Photographie d'une goutte d'eau milliQ sur l'un des échantillons épais permettant de mesurer  $\theta^*$  (J. Conti, CRMM).

	Eréf	E1	E2	E3	E4	E5	E6	E7	E7bis	E8	E9	E10	E11	E12
$\theta^*$ (°) moyen	107,5	120,8	127,2	128,4	122,6	118,2	118,6	116,9	115,5	108,5	116,8	115,2	105,2	104,4
Ecart type (°)	2,9	1,7	4,3	1,8	1,9	1,9	2,4	3,0	2,2	4,1	3,0	2,8	4,6	1,6

Tableau I.6 : Angles de contact  $\theta^*$  moyen et écart type mesurés pour chacun des échantillons épais (mesures effectuées par J. Conti, CRMM).

Des critères énoncés au § I.2.4, le critère le plus contraignant pour que l'interface sous la goutte soit composite, c'est-à-dire pour que du gaz soit piégé dans les cavités de la rugosité, est le suivant : l'angle d'avance est tel que  $\theta_A \geq \beta + \pi/2$  et la dimension de la cavité est très inférieure à la longueur capillaire du liquide. Dans le cas des échantillons épais, les cavités sont des trous cylindriques tels que  $2r \leq 30 \mu\text{m}$ . Les diamètres des trous sont donc très inférieurs à la longueur capillaire de l'eau qui avoisine 2,7 mm. Par ailleurs, les trous sont cylindriques si bien que  $\beta = 0$ . De plus, la surface des échantillons est hydrophobe, donc :  $\theta_Y > 90^\circ$ , comme le prouve la valeur de  $\theta^*$  mesurée sur l'échantillon de référence lisse. Enfin

l'angle d'avance est tel que :  $\theta_A \geq \theta_Y$ , donc l'inéquation (I.12) s'applique pour tous les échantillons rugueux épais. Ainsi, lorsque la goutte d'eau est posée sur un de ces échantillons, les trous cylindriques sont remplis de gaz, et  $1 - \tau$  correspond alors à la fraction surfacique de gaz sous la goutte.

Par ailleurs, comme l'indique le tableau I.7, les valeurs de  $\theta_C$  calculées à partir de l'équation (I.9) sont inférieures à  $102^\circ$  pour tous les échantillons. Ainsi, il suffit que l'angle de Young du système échantillon hydrophobe – eau soit supérieur à  $102^\circ$  pour que les interfaces composites obtenues avec tous les échantillons soient stables (cf. § I.2.3.6). Il semble que ce soit le cas comme le montre la valeur de  $\theta^*$  mesurée sur l'échantillon de référence lisse (tableau I.6). Les valeurs de  $r_w$  nécessaires au calcul de  $\theta_C$  sont obtenues à partir de  $\tau$  grâce à la relation :

$$r_w = 1 + \frac{2h}{r}(1 - \tau). \quad (\text{I.15})$$

Echantillon	E1	E2	E3	E4	E5	E6	E7	E7bis	E8	E9	E10	E11	E12
$r_w$	7,0	4,0	3,0	4,6	2,8	2,2	3,4	1,8	2,2	1,8	2,2	1,6	1,4
$\theta_C (^\circ)$	94,4	98,2	101,5	94,4	98,2	101,5	94,4	101,5	98,2	101,5	94,4	98,2	101,5

Tableau I.7 : Valeurs de  $r_w$  et de  $\theta_C$  calculées pour chaque échantillon épais rugueux.

Sur la figure I.20, le cosinus de l'angle de contact moyen  $\theta^*$  mesuré pour chaque échantillon (tableau I.6) avec son incertitude associée est tracé en fonction de la valeur de  $\tau$  correspondante (tableau I.5). En faisant une régression linéaire simple (droite des moindres carrés) à partir de ces points de mesure, il est constaté que les points suivent assez bien une fonction affine dont l'ordonnée à l'origine est égale à 1, puisque le coefficient de détermination  $R^2$  est supérieur à 80 %. Grâce à l'équation (I.6), le coefficient directeur de la droite obtenue permet alors de remonter à un angle  $\theta_Y$  moyen sur l'ensemble des échantillons :  $\theta_{Y\text{moy}} = 104,8^\circ$ . Cette valeur obtenue est proche de l'angle moyen  $\theta^*$  mesuré sur l'échantillon lisse, et est incluse dans sa plage d'incertitude.

Il a donc été vérifié que le modèle défini par l'équation (I.6) décrit relativement bien la variation de  $\theta^*$  avec  $\tau$ . L'accord entre le modèle et les résultats est surtout bon pour des valeurs de  $\tau$  sensiblement inférieures à 1. Cette observation peut s'expliquer par le fait que pour des valeurs de  $\tau$  élevées, la distances  $e$  séparant deux trous voisins n'est pas négligeable devant la taille de goutte. L'angle apparent mesuré dans ce cas ne se comporte plus comme un

angle macroscopique vis-à-vis de la rugosité contrôlée et il devient très sensible à la position de la ligne de contact.

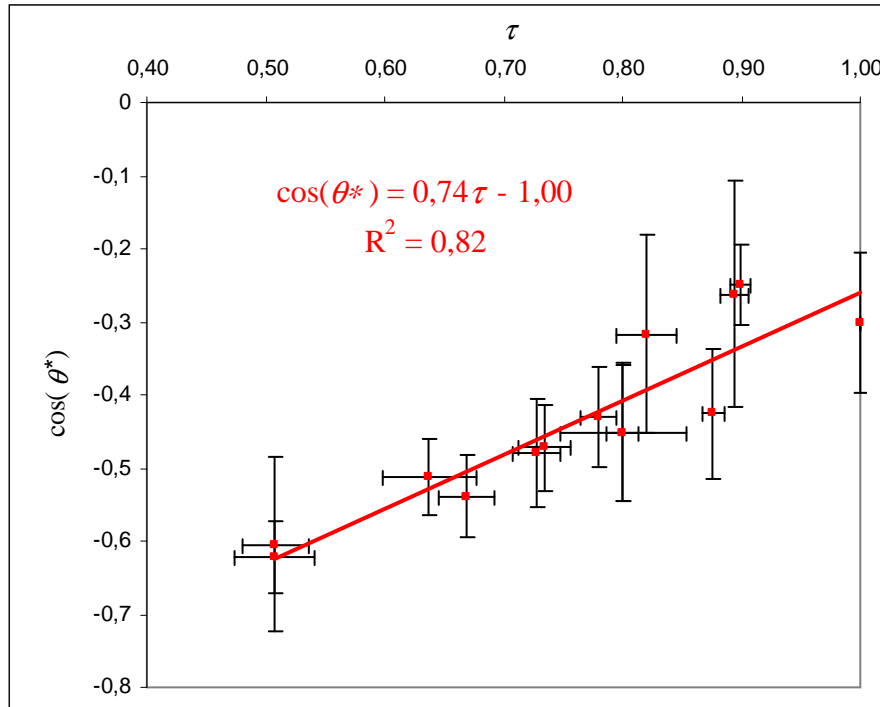


Figure I.20 : Cosinus de l'angle de contact apparent  $\theta^*$  en fonction de la fraction surfacique  $\tau$  d'interface solide – liquide sous la goutte.

## I.5. Conclusion

Dans ce chapitre, une étude bibliographique a été menée pour déterminer les mécanismes à l'origine du piégeage des poches de gaz à l'interface entre le sodium liquide et l'acier austénitique.

L'étude préalable du cas général du mouillage d'un solide rugueux par un liquide fait apparaître que des poches de gaz peuvent être piégées si le système solide-liquide est non-mouillant et si la rugosité du solide comporte des changements abrupts de pentes supérieurs à  $\pi - \theta_Y$ . Pour une surface réelle, c'est-à-dire dont la rugosité est aléatoire, il est difficile de savoir si l'interface est composite et de connaître la proportion d'interface liquide-gaz sous le liquide sans connaître parfaitement la topologie de la surface solide ainsi que la valeur de l'angle de Young partout sous le liquide.

Les différents facteurs contrôlant le mouillage de l'acier austénitique par le sodium ont ensuite été identifiés. Il ressort que la présence d'un film d'oxydes de chrome stable est à l'origine du non-mouillage permanent observé pour une température du sodium inférieure à



environ 300°C. Au-delà de 320°C, un mouillage irréversible, traduisant la réduction ou la transformation du film d'oxydes en oxydes ternaires, se produit au bout d'un temps d'autant plus court que la température est élevée.

Par ailleurs, l'efficacité du dépôt d'or pour l'obtention d'un bon couplage acoustique des TUSHT a été expliquée en considérant le comportement de mouillage de l'or par le sodium liquide. Il apparaît en effet que ce métal fait partie de cette famille de métaux (métaux nobles) dont les oxydes sont très facilement réduits par le sodium.

Pour réaliser des expérimentations en évitant les contraintes liées au sodium liquide telles que sa température élevée et sa réactivité avec l'air et l'eau, un système non-mouillant équivalent est utilisé. Il s'agit du système silicium hydrophobe-eau. Le silicium a été choisi car sa surface peut être traitée afin de la rendre hydrophobe et la géométrie de sa rugosité peut être modelée par des procédés spécifiques. Il est ainsi possible de connaître la fraction surfacique de gaz piégé lorsque cette surface rugueuse idéale est mise en contact avec de l'eau. Plusieurs échantillons avec des surfaces à rugosité contrôlée ont été fabriqués. La gamme de variation de la fraction surfacique de gaz obtenue avec ces échantillons a été choisie de façon à couvrir une plage pertinente autour d'une valeur présumée être la frontière entre deux régimes de transmission.

Des mesures d'angles de contact de mouillage par la méthode de la goutte posée ont été réalisées avec ces échantillons. L'analyse des résultats a permis de vérifier que le mouillage de ces surfaces était composite. Une bonne corrélation a été trouvée entre les angles de contact apparents mesurés et la fraction surfacique de gaz piégé à l'interface.

Le système équivalent silicium hydrophobe - eau permettra d'étudier en eau, au chapitre suivant, la stabilité, et plus généralement le comportement des poches de gaz suite à une variation du niveau de saturation en gaz dissous dans le liquide ou à une variation de pression quasi-statique. Les résultats obtenus seront ensuite généralisés, sous certaines conditions, au cas du système 304L - sodium.

## **Chapitre II : Comportement des poches de gaz en régime quasi-statique**

---

### **II.1. Introduction**

Au premier chapitre, il a été vu que, sous certaines conditions, des poches de gaz peuvent être piégées par la rugosité d'une surface solide immergée dans un liquide ne la mouillant pas. Il s'agit dans ce chapitre de déterminer les conditions de stabilité de ces poches de gaz vis-à-vis du niveau de saturation en gaz du liquide et de la pression hydrostatique.

Des perspectives d'études et des pistes de solutions industrielles pour améliorer le couplage acoustique des TUSHT avec le sodium sont proposées dans ce chapitre. Vis-à-vis de la complexité de la problématique de la thèse et du temps imparti, il est choisi en effet de se limiter à des études de faisabilité ou des analyses de tendances pour conforter certaines voies plutôt qu'une étude globale ne traitant qu'une seule voie.

Dans un premier temps, les notions essentielles que sont le niveau de saturation en gaz d'un liquide et la nucléation de bulles sont introduites. Celles-ci permettent de présenter le modèle de la crevasse qui décrit le comportement d'une poche de gaz dans une crevasse de forme géométrique simple. Pour faciliter la compréhension et se ramener à des cas traités dans la littérature, le cas de la stabilité d'une bulle libre est traité avant celui d'une poche de gaz dans une crevasse.

Le modèle de la crevasse issu de la littérature est ensuite légèrement ajusté pour prendre en compte l'effet de la pression hydrostatique, en plus du niveau de saturation en gaz du liquide, sur la stabilité des poches de gaz en régime quasi-statique. Il est alors appliqué aux cas de géométries idéales tels que des crevasses coniques, cylindriques et en forme de rainures à section rectangulaire et triangulaire. Cela permet de développer une analyse théorique du comportement des poches de gaz piégées par la rugosité artificielle des échantillons expérimentaux mais aussi de se rapprocher du cas d'une rugosité réelle résultant d'un usinage mécanique.

Enfin, deux expériences sont présentées : la première examinant l'influence du niveau de saturation en gaz du liquide et la seconde l'effet de la pression hydrostatique. Les résultats obtenus sont interprétés grâce à l'analyse théorique.

## II.2. Stabilité et nucléation des bulles : bibliographie

### II.2.1. Niveau de saturation en gaz d'un liquide

La concentration  $c$  en gaz dissous au voisinage d'une surface liquide en contact avec un gaz à la pression partielle  $p$  est déterminée par la loi de Henry :

$$c = K_H(T) p \quad (\text{II.1})$$

où  $K_H(T)$  est une fonction de la température seulement. Bien que la loi de Henry s'applique normalement plutôt pour un volume complet de liquide en équilibre avec un gaz, c'est-à-dire à température constante et à saturation, elle convient aussi pour cette situation. En effet, cela revient à considérer seulement une couche superficielle du liquide infiniment fine qui est à l'équilibre avec le gaz au bout d'un temps infiniment court.

La relation (II.1) peut être utilisée pour convertir des concentrations en pression, et la tension de gaz  $G$  [Atc89] correspondant à une concentration donnée  $c$  est définie telle que :

$$G = c/K_H(T) \quad (\text{II.2})$$

Un récipient fermé partiellement rempli d'un liquide tel qu'illustré à la figure II.1 est considéré. L'espace au-dessus du liquide, le gaz de couverture, contient de la vapeur et un autre gaz. La pression dans le liquide  $p_L$  dépend de la profondeur  $h_L$  suivant la relation :

$$p_L(h_L) = p_L(0) + \rho g h_L \quad (\text{II.3})$$

avec  $\rho$  la masse volumique du liquide,  $g$  l'accélération de la pesanteur et  $p_L(0)$  la pression dans le liquide au niveau de sa surface libre telle que :

$$p_L(0) = p_g + p_v \quad (\text{II.4})$$

où  $p_g$  et  $p_v$  représentent respectivement la pression partielle du gaz et la pression de vapeur du liquide dans le gaz de couverture.

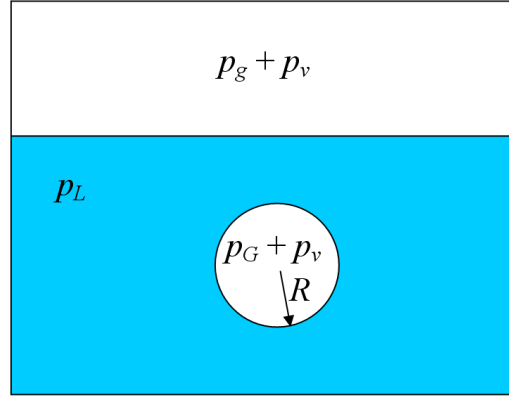


Figure II.1 : Schéma d'un récipient fermé partiellement rempli avec un liquide saturé par son gaz de couverture. Dans le liquide se trouve une bulle de rayon  $R$  [Atc89].

A l'équilibre, la loi de Henry s'applique : le liquide est uniformément saturé par son gaz de couverture et la relation (II.1) s'applique pour tout le volume du liquide. A partir de (II.1) et (II.4), la concentration de saturation  $c_s$  à la pression  $p_g$  est donnée par :

$$c_s = K_H(T)(p_L(0) - p_v) \quad (\text{II.5})$$

Pour un liquide non saturé (ou bien non uniformément saturé), si  $c$  est la concentration en gaz dissous à un endroit donné dans ce liquide, le rapport de saturation [Lut88] à cet endroit peut être défini comme :

$$\alpha_s = \frac{c}{c_s} \quad (\text{II.6})$$

où  $c_s$  est la concentration à saturation à la pression  $p_g$ . La sursaturation [Lut88] est définie comme :

$$\sigma = \alpha_s - 1. \quad (\text{II.7})$$

Ainsi, pour un liquide saturé,  $\sigma = 0$ , pour un liquide sursaturé  $\sigma > 0$ , et pour un liquide sous-saturé  $\sigma < 0$ .

## II.2.2. Stabilité d'une bulle de gaz libre dans un liquide

### II.2.2.1. Liquide saturé

Une bulle sphérique de rayon  $R$  libre dans un liquide uniformément saturé par son gaz de couverture est maintenant considérée (Fig. II.1). Il existe une pression interne  $p_i$  dans la bulle qui est la somme de la pression partielle du gaz dans la bulle  $p_G$  (à ne pas confondre avec  $p_g$ ) et de la pression de vapeur du liquide  $p_v$ , telle que :

$$p_i = p_G + p_v \quad (\text{II.8})$$

En négligeant les effets hydrostatiques, l'équilibre des contraintes normales s'exerçant sur l'interface de la bulle s'exprime grâce à l'équation de Laplace :

$$p_i = p_L(0) + p_\gamma \quad (\text{II.9})$$

avec  $p_\gamma$  désignant la pression de Laplace telle que :  $p_\gamma = \gamma_{LV} C$ , où  $\gamma_{LV}$  est l'énergie de surface et  $C$  est la courbure, égale à  $2/R$  pour une sphère de rayon  $R$ . De (II.8) et (II.9), il vient :

$$p_G + p_v = p_L(0) + \gamma_{LV} C \quad (\text{II.10})$$

La pression dans la bulle au repos est donc supérieure à la pression dans le liquide immédiatement hors de la bulle à cause de la pression de Laplace.

Dans l'équation (II.10),  $C$  est considérée positive quand le rayon de courbure est tel que l'interface de la poche de gaz ou de la bulle est convexe du point de vue du liquide. Comme  $\gamma_{LV} C > 0$  pour une bulle sphérique,  $p_G > p_L(0) - p_v$ , et par conséquent, d'après (II.1), la concentration en gaz dissous au voisinage de l'interface liquide-gaz de la bulle excède la concentration dans le liquide donnée par (II.5). Ainsi, un gradient de concentration existe dans le système qui conduit à la dissolution de la bulle par diffusion du gaz hors de la bulle [Atc89]. En conséquence, la taille de la bulle se réduit,  $p_\gamma$  augmente, et donc l'excès de pression partielle du gaz devient plus grand. Ainsi une bulle de gaz dans un liquide saturé tendra à se dissoudre complètement. La variation de  $p_v$  avec le changement de taille de la bulle est ici négligée car il est souvent supposé que le transfert de masse est assez rapide pour que  $p_v$  reste constante quels que soient les changements du rayon de la bulle.

### II.2.2.2. Liquide sursaturé

Pour que la bulle libre ne se dissolve pas dans le liquide, il faut donc que, dans la zone où se situe la bulle, ce dernier soit sursaturé par rapport à la pression partielle du gaz  $p_g$  dans son gaz de couverture.

Le liquide est maintenant considéré comme uniformément sursaturé. Dans ce liquide, la concentration  $c$  et la tension de gaz correspondante  $G$  donnée par (II.2) sont donc uniformes. Dans ce cas, la bulle est stable dans le liquide si la concentration  $c_b$  en gaz dissous dans le liquide au voisinage de l'interface liquide-gaz de la bulle est égale à  $c$ .

L'équation (II.10) d'équilibre de l'interface de la bulle peut être réécrite différemment :

$$p_G - (p_L(0) - p_v) = \gamma_{LV} C \quad (\text{II.11})$$

D'après (II.1),

$$p_G = \frac{c_b}{K(T)} \quad (\text{II.12})$$

Si  $c_s$  et  $G_s$  correspondent ici à la concentration et à la tension de gaz de ce même liquide à la même température qui serait saturé par rapport à la même pression partielle de gaz  $p_g$ , alors, en utilisant la relation (II.6) puis la relation (II.1), il vient :

$$p_G = \alpha_s (p_L(0) - p_v) \quad (\text{II.13})$$

En introduisant (II.13) dans (II.11) puis en utilisant les relations (II.1), (II.4) et (II.7), il vient :

$$\sigma p_g = \gamma_V C \quad (\text{II.14})$$

Une bulle dans une solution sursaturée en gaz est alors en équilibre thermodynamique avec la solution si son rayon  $R$ , tel que  $R = 2/C$ , est égal à la valeur critique donnée par (II.14) [Jon99].

### II.2.3. Le phénomène de nucléation de bulles

Cette partie reprend brièvement les notions essentielles et les différents types de nucléation détaillés par Jones [Jon99] qui sont utiles pour pouvoir introduire le modèle de la crevasse. Il définit la nucléation de bulles comme étant une notion générique qui désigne tout processus menant, de façon autogène, à la formation d'une bulle.

La nucléation classique, c'est-à-dire la nucléation homogène dans le volume liquide (cf. § II.2.3.1) ou bien la nucléation hétérogène sur des surfaces moléculairement lisses (cf. § II.2.3.2), exige des niveaux très élevés de sursaturation. Dans ce cas, il est nécessaire de rompre le liquide pour que la phase gazeuse soit formée, et par conséquent surmonter son énorme cohésion ou résistance à la tension. Cependant, à de faibles niveaux de sursaturation, des bulles de gaz pourront germer dans le liquide si celui-ci contient des sites de nucléation (aussi appelés nuclei).

Un site de nucléation est une cavité (ou poche) de gaz séparée du liquide par une interface liquide-gaz, aussi appelée ménisque. Si la courbure  $C$  du ménisque d'un site de nucléation est égale à la valeur critique de l'équation (II.14), alors sa barrière d'énergie de nucléation, c'est-à-dire la somme des travaux des forces agissant sur le ménisque, est nulle. D'autres ménisques de plus grandes courbures auront une barrière d'énergie de nucléation non nulle. Cependant, ces niveaux d'énergie seront largement inférieurs à la barrière d'énergie de nucléation classique.

Ces sites de nucléation peuvent être des microbulles en suspension dans le volume liquide ou bien des cavités de gaz préexistantes sur des particules solides en suspension ou à la surface d'une paroi solide en contact avec le liquide. Le comportement de ce dernier type de sites de nucléation sera étudié de manière détaillée au § II.3.

Les quatre types de nucléation définis par Jones *et al.* [Jon99] sont présentés ci-après.

### II.2.3.1. Type 1 : nucléation homogène classique

Il s'agit de la nucléation dans le volume d'un liquide d'une solution homogène. Il n'y a aucun nucleus présent avant que le système ne soit rendu sursaturé. Ainsi, le niveau requis de sursaturation est très élevé, supérieur à 100 ou plus.

### II.2.3.2. Type 2 : nucléation hétérogène classique

Cette forme de nucléation est essentiellement la même que le type 1, et nécessitera des niveaux comparables de sursaturation. Initialement, le système ne contient pas de cavité de gaz, ni dans le volume, ni sur les parois du contenant. Le système est soudainement rendu sursaturé, par exemple par une réduction soudaine de pression, menant à un événement de nucléation classique. Une bulle peut alors se former dans une crevasse de la surface d'un contenant, sur une surface moléculairement lisse, ou sur une particule dans le volume du liquide (Fig. II.2).



Figure II.2 : Type 2 : nucléation hétérogène classique, catalysée par la présence d'un autre matériau dans le liquide : à gauche, système avant sursaturation; à droite, après. [Jon99]

### II.2.3.3. Type 3 : nucléation pseudo-classique

Cette nucléation comprend la nucléation homogène et hétérogène à partir des cavités de gaz préexistantes sur les parois du contenant, sur la surface de particules en suspension, et à partir des microbulles dans le volume de la solution (Fig. II.3). Au moment où le système est rendu sursaturé, le rayon de courbure de chaque ménisque est inférieur au rayon critique, tel que déterminé par la théorie classique. Ainsi, pour chaque cavité, il existe une barrière d'énergie de nucléation finie qui doit être franchie. Quand le système est sursaturé, des fluctuations locales de sursaturation sont responsables du "déclenchement" des sites de nucléation. La nucléation de type 3 est obtenue à des niveaux faibles de sursaturation.

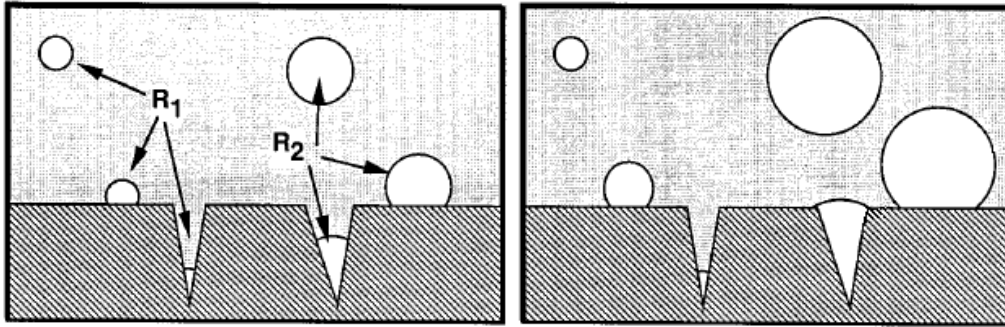


Figure II.3 : nucléation de type 3 : pseudo-classique et de type 4 : non-classique. A gauche, système avant sursaturation (cavités de gaz préexistantes); à droite, après sursaturation. Type 3 : les cavités de gaz de taille  $R_1$  inférieure au rayon critique peuvent croître ou non suivant les fluctuations locales de sursaturation. Type 4 : croissance des cavités de gaz car  $R_2$  est supérieure au rayon critique. [Jon99]

#### II.2.3.4. Type 4 : nucléation non classique

Cette nucléation est considérée comme non classique car il n'y a pas de barrière d'énergie de nucléation à franchir. La nucléation a lieu généralement à des cavités de gaz préexistantes dans la surface du contenant ou ailleurs dans le volume du liquide, et ferait suite aux événements de nucléation de type 2 ou 3 (Fig. II.3). Des cavités de gaz comportant un ménisque dont le rayon de courbure est plus grand que la valeur critique de nucléation représentent une source stable pour la nucléation de bulles.

### II.3. Le modèle de la crevasse en régime quasi-statique

Parmi tous les modèles de nucléation proposés, deux modèles se sont véritablement distingués, à savoir le modèle de perméabilité variable [You82, 84] et le modèle de la crevasse [Har44, Str59, Apf70, Win77, Cru79, Tik86, Tre87, Atc89, Cha06b, c, d, 07]. Le modèle de perméabilité variable, qui attribue la stabilisation du nucleus à un film de molécules tensioactives, a principalement été appliqué à la formation de bulles dans les liquides sursaturés. Le modèle de la crevasse, quant à lui, postule que de petites poches de gaz sont stabilisées au fond de fissures ou de crevasses creusées à la surface d'un solide non mouillé par le liquide dans lequel il est immergé. Le sujet de la thèse porte sur ce dernier type de situation. En effet, une surface rugueuse réelle peut s'apparenter à une surface plane et lisse dans laquelle sont creusées des crevasses. Par ailleurs, outre le fait que ce modèle ait été appliqué à divers types de cavitation, il apparaît très efficace pour expliquer les processus de cavitation acoustique [Str59, Apf70, Cru79, Atc89]. C'est pourquoi il a été choisi d'étudier et d'appliquer uniquement le modèle de la crevasse.



En 1944, Harvey *et al.* [Har44] ont été les premiers à mettre en avant le modèle de la crevasse. A partir de ce modèle, Strasberg [Str59] a tenté de prédire l'effet de crevasses imparfaitement mouillées sur le seuil de cavitation. Il a considéré la concentration en gaz dissous et le degré de pré-pressurisation. De plus, des travaux ont été faits par Winterton [Win77] et par Apfel [Apf70], qui ont étendu le raisonnement de Strasberg pour inclure les effets de la pression de vapeur, de la température et de la taille de la crevasse. Ils ont permis d'obtenir des prédictions qualitatives du seuil de nucléation à partir de tels germes pour des variations de la pression statique du liquide. Trevena [Tre87] a aussi étudié la réponse d'une poche de gaz dans une crevasse à des pressions quasi-statiques. Le seuil de nucléation dans le modèle de Trevena correspond à la réduction de pression nécessaire pour faire reculer le ménisque.

Le modèle de la crevasse appliqué en régime quasi-statique détermine l'état d'équilibre d'une poche de gaz, c'est-à-dire la courbure et la position du ménisque (et donc son volume) mais aussi la pression partielle du gaz, adopté suite à une variation du niveau de saturation du liquide ou de la pression dans le liquide. Cet état d'équilibre avec le liquide est obtenu après que la diffusion de gaz au travers du ménisque ait eu le temps de complètement s'effectuer. Il est important de bien distinguer l'état d'équilibre de la poche de gaz avec le liquide et celui du liquide avec son gaz de couverture. Par exemple, lorsqu'un liquide est brutalement rendu sursaturé par rapport à la pression du gaz de couverture, il ne revient pas instantanément à l'équilibre. Pendant ce temps, l'état d'équilibre de la poche de gaz avec le liquide sursaturé peut être atteint si la diffusion de gaz au niveau du ménisque s'est complètement réalisée.

Hormis au paragraphe immédiatement suivant (§ II.3.1) ou lorsque cela est précisé, tous les raisonnements, relations, commentaires et interprétations établis dans cette partie sont originaux. La nouveauté et l'intérêt de cette analyse réside principalement dans l'aspect pratique et souvent très particulier des situations traitées.

### **II.3.1. Stabilisation du nucleus vis-à-vis du niveau de saturation en gaz du liquide**

Tandis que les autres modèles de nucléation nécessitent que la pression de Laplace soit contrebalancée pour que le nucleus soit stable ; dans le modèle de la crevasse, au contraire, la pression de Laplace stabilise le nucleus.

La différence avec le cas de la bulle libre (§ II.2.2) est que, grâce à la présence du solide, le ménisque n'est pas forcément convexe du point de vue du liquide; c'est-à-dire que  $C$  n'est pas obligatoirement positive. Or, dans le cas de la bulle libre à l'équilibre, pour contrer

l'effet de l'énergie de surface du liquide, la pression à l'intérieur de la bulle  $p_i$  doit être plus grande de  $p_\gamma$  que la pression dans le liquide  $p_L$  (équation (II.9)). Comme il a été vu au § II.2.2.1, ce déséquilibre de pression de gaz entraîne que le gaz aura tendance à quitter la bulle pour se dissoudre dans un liquide saturé en gaz. Cependant, si la courbure de la bulle était dans l'autre sens, c'est-à-dire concave du point de vue du liquide, ce qui correspondrait à un rayon de courbure  $R < 0$ , la pression de Laplace agirait vers l'intérieur du liquide, réduisant la pression du gaz à l'intérieur de la bulle, si bien que du gaz dissous tendrait à quitter le liquide pour entrer dans la bulle.

Pour illustrer cette remarque, la figure II.4 montre une poche de gaz dans une crevasse conique dans trois situations différentes. Dans cette géométrie idéalisée, le ménisque est une calotte sphérique formant avec le solide un angle  $\theta$  qui ne peut excéder  $\theta_A$ , l'angle de contact d'avance, et ne peut être plus petit que  $\theta_R$ , l'angle de contact de recul :

$$\theta_R \leq \theta \leq \theta_A. \quad (\text{II.15})$$

Le rayon de courbure  $R$  est représenté par une flèche orientée dans le sens de l'action de la pression de Laplace  $p_\gamma$ . L'angle  $\theta$  du ménisque contre la paroi du matériau solide est représenté. Si le ménisque est concave du point de vue du liquide (Fig. II.4.a),  $R < 0$  et, par conséquent,  $p_\gamma$  agit pour réduire la pression interne  $p_i$  de la poche de gaz (équation (II.9)). Si l'angle  $\theta$  et la géométrie de la crevasse sont tels que le ménisque est plat (Fig. II.4.b), le rayon de courbure est infini, et donc  $p_\gamma = 0$ . La pression à l'intérieur de la poche de gaz sera donc égale à la pression dans le liquide :  $p_i = p_L$ . Enfin, si le ménisque est convexe du point de vue du liquide (Fig. II.4.c),  $R > 0$ ,  $p_\gamma$  agira donc pour augmenter  $p_i$  au-dessus de  $p_L$ .

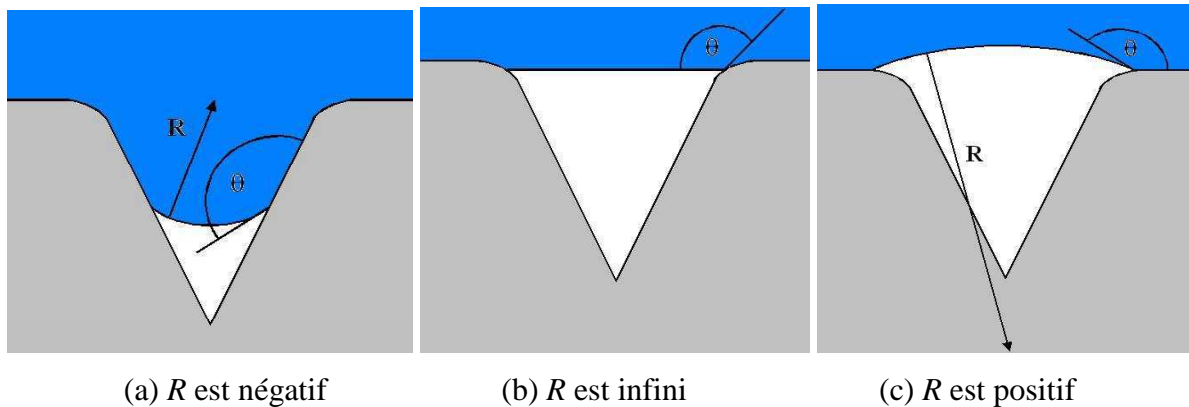


Figure II.4 : Schéma d'une poche de gaz à l'intérieur d'une crevasse conique illustrant trois situations différentes selon le sens de la courbure du ménisque. [Lei94]

Par conséquent, dans le cas de la figure II.4.b, si la concentration dans le liquide est uniformément  $c_s$ , la concentration en gaz  $c$  dans le liquide au voisinage de l'interface peut être égale à  $c_s$ , et pourtant le nucleus peut demeurer indéfiniment, la crevasse permettant indirectement d'éviter la dissolution de la poche de gaz. Même dans un liquide sous-saturé, pour lequel  $\sigma < 0$ , la stabilité d'un nucleus peut être obtenue. Dans ce cas, il suffit que le ménisque soit convexe du point de vue du gaz, telle que la courbure  $C$  dans (II.14) devienne négative (Fig. II.4(a)).

### II.3.2. Prise en compte de la pression hydrostatique

Jusqu'ici, les effets hydrostatiques ont été négligés. En réalité, en plus du niveau de saturation du liquide, la pression hydrostatique doit être prise en compte pour pouvoir déterminer les conditions de stabilité d'une bulle ou d'une poche de gaz dans une crevasse. Le cas général d'une cavité de gaz, qui peut être une bulle ou une poche de gaz dans une crevasse, située à une profondeur  $h_L$  dans un liquide non saturé est maintenant considéré.

La pression interne  $p_i$  dans la cavité de gaz est la somme de la pression partielle du gaz  $p_G$  et de la pression de vapeur du liquide  $p_v$  :

$$p_i = p_G + p_v. \quad (\text{II.16})$$

L'équilibre des contraintes normales s'exerçant sur l'interface de la bulle s'exprime grâce à l'équation de Laplace :

$$p_i = p_L(h_L) + p_\gamma \quad (\text{II.17})$$

où  $p_L(h_L)$  désigne la pression du liquide à la profondeur  $h_L$ . L'égalité des équations (II.16) et (II.17) et l'utilisation de la relation (II.3) donne :

$$p_G + p_v = p_L(0) + \rho g h_L + \gamma_{LV} C \quad (\text{II.18})$$

Dans ce cas général, le même raisonnement que celui du § II.2.2.2 peut être tenu et la relation (II.13) peut être utilisée. L'introduction de (II.13) dans (II.18) et l'utilisation des relations (II.1) et (II.7) permet d'obtenir :

$$C = \frac{\sigma p_g - \rho g h_L}{\gamma_{LV}}. \quad (\text{II.19})$$

Atchley et Prosperetti [Atc89] ont négligé les effets hydrostatiques, ce qui revient à considérer  $h_L = 0$ . Dans ce cas, la relation (II.19) équivaut à la relation (II.14). Lesueur [Les04], quant à elle, a négligé les effets du niveau de saturation du liquide, ce qui revient à imposer  $\sigma = 0$  dans l'équation (II.19), c'est-à-dire à considérer le liquide comme saturé.

Dans ce qui suit, la géométrie de la crevasse correspond à un cône de demi-angle d'ouverture  $\beta$  tel qu'illustré à la figure II.5. Le rayon de l'embouchure de la crevasse est noté  $r$ , et le rayon du cercle de contact du ménisque est noté  $r_m$ . Dans la situation de la figure II.5, le cercle de contact du ménisque est situé à l'embouchure de la crevasse si bien que  $r_m = r$ . Le rayon du cercle de contact est relié à  $\beta$ , au rayon de courbure  $R = 2/C$  du ménisque, et à l'angle local de contact d'équilibre  $\theta$  que fait le ménisque avec la surface conique de la crevasse, suivant la relation :

$$r_m = r = R \cos(\theta - \beta). \quad (\text{II.20})$$

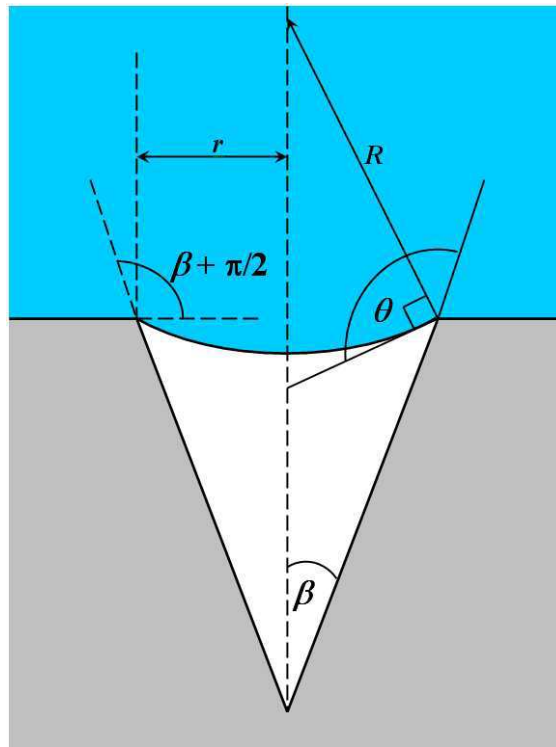


Figure II.5 : Schéma d'une poche de gaz à l'intérieur d'une crevasse conique avec un ménisque situé à l'embouchure de la crevasse.

D'après (II.19) et (II.20), lorsque le cercle de contact du ménisque est situé à l'embouchure de la crevasse, l'angle de contact  $\theta$  d'équilibre pour une poche de gaz stable vis-à-vis du niveau de saturation du liquide et de la pression hydrostatique est donné par :

$$\frac{2\gamma_{LV} \cos(\theta - \beta)}{r} = (\sigma p_g - \rho g h_L). \quad (\text{II.21})$$

Le critère minimum pour qu'une crevasse conique puisse piéger du gaz lors de l'immersion est donné par la relation (I.11), à savoir  $\theta_A > \beta$ . Cependant, si ce premier critère est respecté, le ménisque ne sera stable au niveau de l'embouchure de la crevasse que si

l'angle  $\theta$  calculé à partir de l'équation (II.21) respecte la relation (II.15). A cause de l'effet de canthotaxie (cf. § I.2.4.1) qui ne se produit que dans ce cas particulier où le ménisque est à l'embouchure de la crevasse, la plage de variation de  $\theta$  entre  $\theta_A$  et  $\theta_R$  est beaucoup plus grande que pour toute autre position du cercle de contact à l'intérieur ou à l'extérieur de la crevasse.

Ainsi, à cause d'une sous-saturation plus importante du liquide et/ou une augmentation de la pression hydrostatique l'angle calculé à partir de (II.21) peut atteindre la valeur  $\theta_A$  mesuré sur la surface conique de la crevasse. Si  $\sigma$  diminue encore et/ou  $h_L$  augmente encore, alors le cercle de contact du ménisque se déplacera spontanément vers le fond de la crevasse en conservant l'angle  $\theta_A$ . Cet évènement peut entraîner une dissolution d'une partie du gaz de la poche dans le liquide. Si  $\theta_A > \beta + \pi/2$ , le déplacement du ménisque s'arrêtera lorsque le rayon de son cercle de contact  $r_m$  aura atteint la valeur donnée par :

$$\frac{2\gamma_{LV} \cos(\theta_A - \beta)}{r_m} = (\sigma p_g - \rho g h_L). \quad (\text{II.22})$$

En effet, les termes de gauche et de droite de cette équation sont forcément négatifs. Lorsque  $\sigma$  diminue et/ou  $h_L$  augmente, la valeur absolue du terme de droite augmente. Par conséquent, la valeur absolue du terme de gauche peut équilibrer celle du terme de droite grâce à une diminution de  $r_m$ . En revanche, si  $\theta_A \leq \beta + \pi/2$ , dans ce cas les termes de gauche et de droite de cette équation sont forcément positifs. Lorsque  $\sigma$  diminue et/ou  $h_L$  augmente, la valeur absolue du terme de droite cette fois diminue. En conséquence, l'augmentation de la valeur absolue du terme de gauche, liée la diminution de  $r_m$  due au déplacement vers le fond, ne peut plus être équilibrée par le terme de droite. Le déplacement de la ligne de contact est alors mécaniquement instable mais la vitesse de déplacement de la ligne de contact est limitée par la vitesse de diffusion du gaz au niveau du ménisque. A terme, cette situation conduira à une dissolution complète de la poche de gaz.

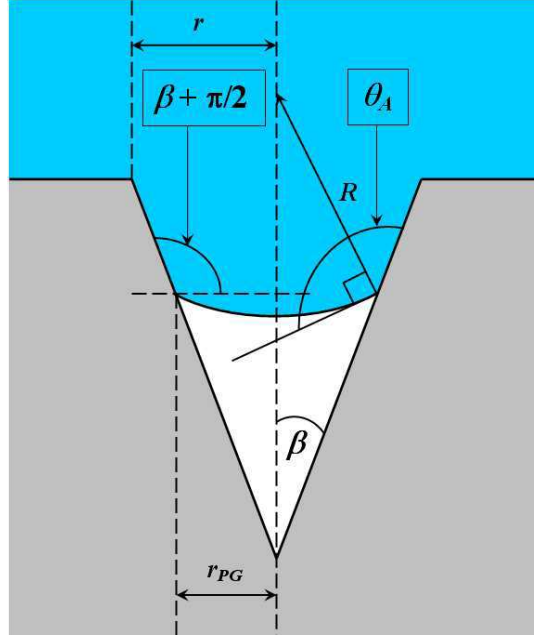


Figure II.6 : Schéma d'une poche de gaz à l'intérieur d'une crevasse conique avec un ménisque avançant vers le fond de la crevasse en conservant un angle  $\theta_A$ .

A de basses températures et pour un liquide fortement sous-saturé, la pression de vapeur et la pression partielle de gaz dans la crevasse peuvent être rendues négligeables. Et donc à première vue, il semblerait qu'une augmentation de pression du liquide permettrait de remplir la crevasse de liquide et ainsi la désactiver (suppression du nucleus). Si l'on effectue alors une expérience d'ébullition ou de cavitation, la cavité restera inactive. Pourtant, en pratique, il est impossible de désactiver les sites de nucléation même en imposant des pressions très importantes [Har44]. Comme le stipule la relation (II.22), si les parois de la cavité sont suffisamment abruptes, c'est-à-dire  $\beta$  suffisamment petit, et si  $\theta_A$  est suffisamment grand (et en tout cas supérieur à  $\beta + \pi/2$ ), alors la pression de Laplace pourra équilibrer une pression du liquide infiniment grande ou supporter un dégazage total lorsque  $r_m$  tendra vers zéro au fond de la crevasse. L'équilibre peut même être obtenu sans gaz du tout (gaz incondensable s'entend), la différence entre  $p_L$  et  $p_v$  à l'équation (II.18) étant complètement équilibrée par la pression de Laplace.

Si initialement le cercle de contact du ménisque est situé entre le fond et l'embouchure de la crevasse, le cas inverse peut aussi être envisagé. En effet, l'angle calculé à partir de (II.21) où  $r$  est remplacé par  $r_m$ , peut atteindre la valeur  $\theta_R$ , par exemple à cause d'une sursaturation plus importante du liquide et/ou une diminution de la pression hydrostatique. Le cercle de contact du ménisque se déplacera alors spontanément vers l'embouchure de la crevasse en conservant l'angle  $\theta_R$ . Cet événement pourra, suivant le cas, induire un flux de gaz

du liquide vers la poche de gaz. Si  $\theta_R > \beta + \pi/2$ , le déplacement du ménisque s'arrêtera lorsque le rayon de son cercle de contact  $r_m$  aura atteint la valeur donnée par l'équation (II.22) dans laquelle  $\theta_A$  est remplacé par  $\theta_R$ . Si  $\theta_R < \beta + \pi/2$ , là encore, le déplacement sera mécaniquement instable mais la vitesse de déplacement de la ligne de contact sera limitée par la vitesse de diffusion du gaz au niveau du ménisque. Lorsque la ligne de contact aura atteint l'embouchure, si la croissance instable de la poche de gaz se poursuit, elle peut conduire à la nucléation d'une bulle libre [Tre87].

A noter que sur les figures II.5 et II.6, le ménisque a été représenté concave du point de vue du liquide. Néanmoins, le raisonnement précédent a été appliqué aussi pour un ménisque convexe.

Atchley et Prosperetti [Atc89] ont négligé les effets hydrostatiques. Ainsi, dans le cas d'un liquide saturé ( $\sigma = 0$ ), ils font remarquer que, si l'angle de contact ne présente aucune hystérésis (c'est-à-dire si  $\theta = \theta_A = \theta_R$ ), seuls les nuclei dont l'ouverture est définie de la manière très restrictive telle que  $\beta = \theta_R - \pi/2 = \theta_A - \pi/2$  (cf. équation (II.21) avec  $h_L = 0$ ) peuvent être stables. Ils ajoutent que, comme vraisemblablement il n'y a qu'un nombre limité de tels nuclei, la cavitation devrait être plutôt rare, au contraire de l'expérience. Ils en concluent que le mécanisme responsable de l'hystérésis de l'angle de contact agirait aussi à l'échelle des nuclei.

### II.3.3. Application du modèle à des géométries particulières de motifs de rugosité

#### II.3.3.1. Trous cylindriques et rainures à section rectangulaire

Les crevasses en forme de trou cylindrique ou de rainure à section rectangulaire sont traitées ici car ce sont les formes qui ont été choisies comme motifs de rugosité des échantillons expérimentaux. Il est rappelé que ces deux formes comportent toutes deux des parois orthogonales et un fond plat parallèle à la face des échantillons à cause du procédé de gravure. Ainsi, pour ces deux géométries particulières :  $\beta = 0$ , et quelle que soit la position de la ligne de contact du ménisque dans la crevasse, la dimension caractéristique  $r$  du ménisque est toujours la même. Comme cela a été précisé au chapitre I, pour le trou cylindrique,  $r$  correspond au rayon du cylindre, et pour la rainure à section rectangulaire,  $r$  correspond à la demi-largeur de la rainure. Cette dimension  $r$  peut être défini telle que :

$$r = R \cos \theta \quad (\text{II.23})$$

où  $\theta$  est l'angle de contact que fait le ménisque avec les parois de la crevasse et  $R$  est le rayon de courbure du ménisque de la poche de gaz.  $R = \Lambda/C$  avec  $\Lambda = 2$  pour le trou cylindrique et  $\Lambda = 1$  pour la rainure à section rectangulaire (cf. annexe 1).

Par ailleurs ces formes très simples permettent d'appliquer facilement le modèle de la crevasse qui, jusqu'ici, n'a été utilisé que pour le cas théorique un peu plus compliqué de la crevasse conique. En introduisant (II.23) dans (II.19), il vient :

$$\frac{\Lambda \gamma_{LV} \cos \theta}{r} = \sigma p_g - \rho g h_L. \quad (\text{II.24})$$

D'après cette équation, à une profondeur  $h_L$  donnée, il existe une valeur de l'angle de raccordement  $\theta$  associée (Fig. II.7.a). La valeur de  $\theta$  calculée à partir de (II.24) augmente avec  $h_L$ . Lorsque  $\theta$  devient supérieur à  $\theta_A$ , pour respecter (II.15), l'angle de raccordement se bloque à la valeur  $\theta_A$  (Fig. II.7.b) et la ligne de contact se déplace vers le fond de la crevasse (Fig. II.7.c).

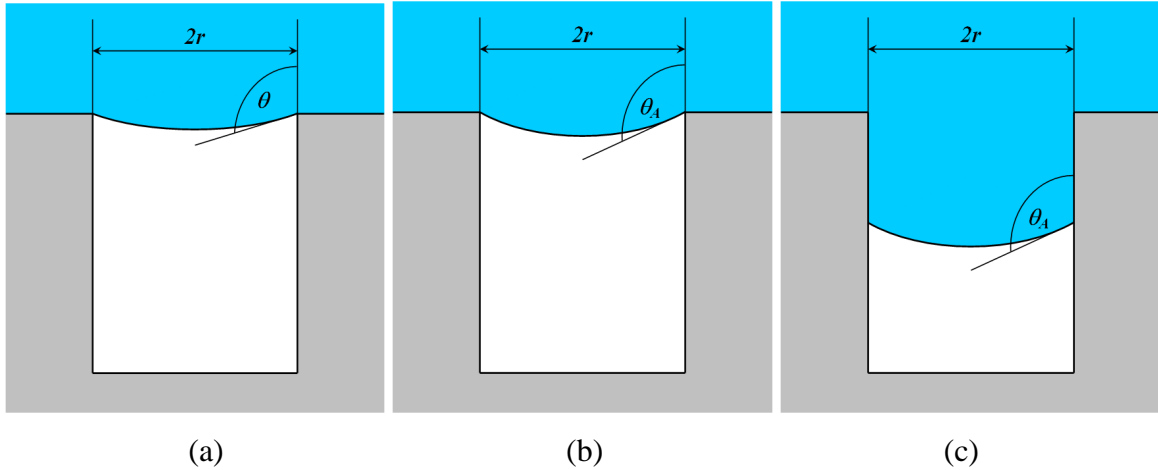


Figure II.7 : Schémas des différentes configurations possibles du ménisque pour un trou cylindrique ou une rainure à section rectangulaire : (a)  $h_L < h_{Lmax}$  (b)  $h_L = h_{Lmax}$  (c)  $h_L > h_{Lmax}$ .

Il existe donc une profondeur maximale  $h_{Lmax}$  à ne pas dépasser pour s'assurer que la ligne de contact reste ancrée à une position donnée dans la crevasse. Si le liquide est saturé ( $\sigma = 0$ ), elle s'écrit :

$$h_{Lmax} = -\frac{\Lambda \gamma_{LV} \cos \theta_A}{\rho g r}. \quad (\text{II.25})$$

La position où est ancrée la ligne de contact correspond à l'embouchure de la crevasse si dans tout "l'historique" de la crevasse immergée dans le liquide, la valeur de  $\theta$  calculée à partir de (II.24) n'a jamais dépassé les limites stipulées par (II.15). Dans ce cas, si la



protubérance due à la courbure du ménisque ne touche pas le fond de la crevasse, la fraction surfacique d'interface liquide-gaz  $\phi_G$  entre la surface des échantillons et le liquide est alors connue. Elle est égale à  $1 - \tau$ . Le contact entre le ménisque et le fond d'un trou cylindrique provoque le collapse de la poche de gaz. Pour s'assurer que le ménisque ne touche pas le fond de la crevasse, la profondeur  $h$  de la crevasse doit être supérieure à la flèche maximale du ménisque  $pf_{\max}$  donnée par [Ext04] :

$$pf_{\max} = r \tan\left(\frac{\theta_A - \pi/2}{2}\right). \quad (\text{II.26})$$

Cette relation est aussi applicable au cas des rainures à section rectangulaire.

### II.3.3.2. Rainures à section triangulaire

Pour se rapprocher le plus possible d'une rugosité réelle résultant d'un usinage mécanique mais aussi pour appliquer facilement le modèle de la crevasse, la topologie particulière de rugosité illustrée à la figure II.8 est considérée. Il s'agit d'un profil en dents de scie caractérisé par un réseau périodique de rainures parallèles à section triangulaire. L'analyse du comportement des poches de gaz piégées par ce profil va permettre de fournir deux conclusions importantes. La première indique que la pression hydrostatique constitue un moyen simple et efficace pour limiter la fraction surfacique de gaz à l'interface entre une surface rugueuse et un liquide non-mouillant. La deuxième fournit une interprétation à l'observation selon laquelle la température à laquelle un bon couplage acoustique est observé est la même que celle à laquelle le mouillage est observé ( $\theta^* < 90^\circ$ ).

Pour ce profil particulier, les paramètres  $R_z$ ,  $R_c$ , et  $R_t$  (définis dans la norme ISO 4287 de 1997) sont tous égaux à l'amplitude crête à creux  $h_{cc}$  de la rugosité. Le paramètre  $R_a$  est égal à  $h_{cc}/2$ . Le demi-angle d'ouverture des rainures  $\beta$  est tel que :

$$0 < \beta < \pi/2. \quad (\text{II.27})$$

Il est lié à  $r$  et  $h_{cc}$  par la relation :

$$r = h_{cc} \tan \beta. \quad (\text{II.28})$$

Il est supposé que les dimensions du profil de cette rugosité respectent les critères garantissant le piégeage du gaz énoncés dans le chapitre I.

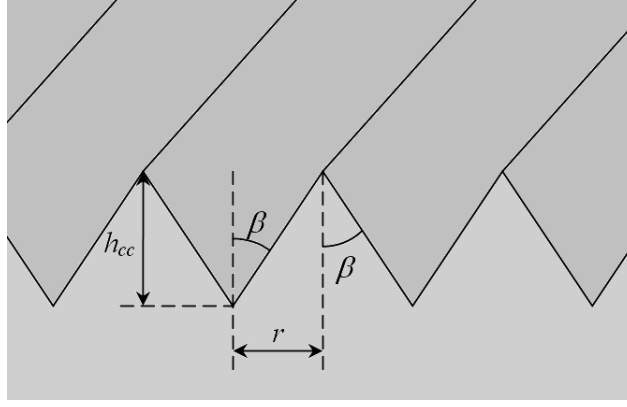


Figure II.8 : Vue en perspective d'un profil de rugosité en dents de scie caractérisé par un réseau périodique de rainures parallèles à section triangulaire.

#### II.3.3.2.1. Liquide saturé et pression hydrostatique variable

Il peut être montré facilement que, lorsque cette rugosité est immergée dans un liquide saturé à une profondeur  $h_L$ , l'angle de contact  $\theta$  d'équilibre satisfait la relation (II.15) et la relation :

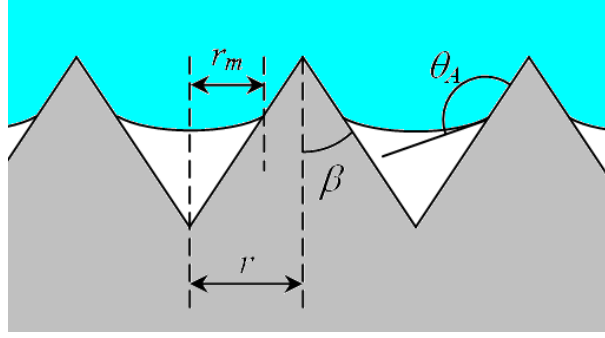
$$-\frac{\gamma_{LV} \cos(\theta - \beta)}{r} = \rho g h_L. \quad (\text{II.29})$$

Pour que la ligne de contact soit ancrée sur les crêtes du profil à une profondeur  $h_L > 0$ , il faut donc, d'après (II.29) que  $\theta$  soit supérieur à  $\beta + \pi/2$ . Si c'est le cas, comme au § II.3.3.1, il existe une profondeur maximale  $h_{L\max}$  à ne pas dépasser pour s'assurer que la ligne de contact reste ancrée sur les crêtes. Elle est donnée par :

$$h_{L\max} = h_L(\theta_A) = -\frac{\gamma_{LV} \cos(\theta_A - \beta)}{\rho g r}. \quad (\text{II.30})$$

Si  $h_L > h_{L\max}$ , le liquide pénètre dans la crevasse et la demi-largeur du ménisque diminue à partir de  $r$  jusqu'à une valeur d'équilibre  $r_m$  (Fig. II.9) donnée par :

$$r_m = -\frac{\gamma_{LV} \cos(\theta_A - \beta)}{\rho g h_L}. \quad (\text{II.31})$$


 Figure II.9 : Configuration des poches de gaz pour  $h_L > h_{Lmax}$ .

La fraction surfacique de gaz  $\phi_G$  entre la surface rugueuse et le liquide est alors donné par :

$$\phi_G = \frac{r_m}{r}. \quad (\text{II.32})$$

En utilisant (II.28) et (II.31), la relation (II.32) devient :

$$\phi_G = -\frac{\gamma_{LV} \cos(\theta_A - \beta)}{\rho g h_L h_{cc} \tan \beta}. \quad (\text{II.33})$$

Il est clair, à partir de (II.33), que plus  $\theta_A$  est grand et  $\beta$  petit, plus la fraction surfacique de gaz  $\phi_G$  est grande. Il apparaît aussi que, pour un couple  $(\theta_A, \beta)$  tel que  $\theta_A > \beta + \pi/2$ ,  $\phi_G$  diminuera avec la profondeur  $h_L$  puisque  $\phi_G$  est inversement proportionnel à  $h_L$ . L'augmentation de la pression hydrostatique constitue donc un moyen simple et efficace pour limiter la fraction surfacique de gaz à l'interface entre une surface rugueuse et un liquide non-mouillant.

A titre indicatif, si une surface telle que  $h_{cc} = 10 \mu\text{m}$  ( $Ra = 5 \mu\text{m}$ ) et  $\beta = 30^\circ$  ( $r = 5,8 \mu\text{m}$ ) est immergée dans du sodium à  $180^\circ\text{C}$  ( $\rho = 916 \text{ kg/m}^3$ ,  $\gamma_{LV} = 0,19 \text{ J/m}^2$  [Rod96]) et que le sodium adopte un angle  $\theta_A = 130^\circ$  (valeur arbitraire) sur les parois des crevasses, la profondeur  $h_{Lmax}$  obtenue à partir de (II.30) est d'environ 64 cm. Le modèle simple développé ici implique donc que pour  $h_L < 64 \text{ cm}$ ,  $\phi_G = 1$ . En revanche, d'après la relation (II.33), pour  $h_L = 1 \text{ m}$ ,  $\phi_G = 0,64$ . Pour  $h_L = 13 \text{ m}$ ,  $\phi_G < 5 \%$ , ce qui signifie qu'à cette profondeur, le couplage acoustique du diaphragme des TUSHT possédant un tel état de surface pourrait être assez bon (si toutefois les poches de gaz sont seules responsables du mauvais couplage acoustique).

Si maintenant la surface rugueuse est remontée vers la surface libre du liquide, ce qui correspond à diminuer  $h_L$ ,  $\phi_G$  ne variera pas tant que  $\theta$  n'aura pas atteint la valeur  $\theta_R$  autorisant le recul de la ligne de contact. En fait, la ligne de contact restera ancrée tant que  $h_L$  n'aura pas diminué en deçà d'une profondeur limite  $h_{Lmin}$  donnée par :

$$h_{L\min} = h_L(\theta_R) = -\frac{\gamma_{LV} \cos(\theta_R - \beta)}{\rho g r_m}. \quad (\text{II.34})$$

Ainsi, il est possible, grâce à l'hystérésis de l'angle de contact, de diminuer  $\phi_G$  de façon irréversible en immergeant la surface rugueuse à une profondeur supérieure à  $h_{L\max}$  puis en la conservant à une profondeur supérieure à  $h_{L\min}$ . Si  $\theta_R < \beta + \pi/2$ , alors d'après (II.34), il est même possible de conserver à n'importe quelle profondeur la valeur minimale  $\phi_G$  obtenue pour la profondeur imposée la plus grande.

Dans l'objectif d'avancer de nouvelles solutions au travers de la thèse, il serait ainsi intéressant d'évaluer expérimentalement l'influence de la pression hydrostatique sur le couplage acoustique des TUSHT lorsque le sodium ne mouille pas leur diaphragme. L'irréversibilité de la pénétration du liquide dans les crevasses pourrait être mise à profit pour améliorer le couplage acoustique. Par exemple, avant de faire fonctionner le TUSHT, celui-ci pourrait être immergé à la profondeur la plus grande possible afin d'obtenir des signaux ultrasonores transmis exploitables. Après avoir laissé passer un temps suffisamment long pour que la diffusion de gaz ait eu le temps de s'effectuer, le capteur serait ensuite remonté à sa profondeur d'utilisation. Même si, lors de la remontée du capteur, la profondeur  $h_{L\min}$  moyenne pour la surface rugueuse du diaphragme est dépassée, la fraction surfacique de gaz au niveau du diaphragme aura peut être diminué, et le couplage acoustique sera ainsi meilleur.

#### II.3.3.2.2. Pression hydrostatique fixée et température variable

Les gaz inertes, et notamment l'argon, sont utilisés comme gaz de couverture du sodium liquide dans les RNR. Leur solubilité dans le sodium, c'est-à-dire le coefficient  $K_H(T)$  de la loi de Henry de l'équation (II.1), augmente exponentiellement avec la température. Si la température du sodium est augmentée, une partie du gaz présent dans les crevasses se dissout et diffuse vers le sodium [Hol73a]. En effet, d'après (II.1), la concentration de saturation  $c_s$  augmente et ainsi, d'après (II.6), le rapport de saturation diminue et induit  $\sigma < 0$  (cf. équation (II.7)) si le liquide était initialement saturé avant l'augmentation de température. Une augmentation de la température du sodium revient donc à le sous-saturer. Dans ce cas, à condition de satisfaire l'équation (II.15), l'angle de contact est donné par la relation :

$$\frac{\gamma_{LV} \cos(\theta - \beta)}{r_m} = \sigma p_g - \rho g h_L. \quad (\text{II.35})$$

Dans cette équation, le terme de droite est négatif, ce qui signifie que  $\theta > \beta + \pi/2$ . Ainsi, plus  $\beta$  est élevé, plus la valeur de  $\theta_A$  requise pour que les poches de gaz soient stables devra être

grande. A une profondeur  $h_L$  donnée, l'augmentation de la température du sodium induit donc les mêmes effets que l'augmentation de  $h_L$  dans un liquide saturé (cf. § précédent) puisque  $\phi_G$  est alors donnée par :

$$\phi_G = \frac{\gamma_{LV} \cos(\theta_A - \beta)}{(\sigma p_g - \rho g h_L) h_{cc} \tan \beta}. \quad (\text{II.36})$$

Par ailleurs, en plus d'induire une augmentation de la solubilité, une augmentation de la température entraîne une augmentation du coefficient de diffusion (ou diffusivité) de l'argon dans le sodium [Hol73a]. Cela permet d'accélérer la dissolution du gaz contenu dans les crevasses et donc d'accélérer la diminution de  $\phi_G$ . Holland et Winterton [Hol73a, b] ont étudié l'ébullition du sodium à partir de sites de nucléation. Ils ont introduit la notion utile de constante de temps  $\tau_d$  de la perte de gaz de ces cavités par diffusion. Cette constante de temps qui dépend de la température et du gaz représente l'échelle de temps du processus de diffusion. Elle correspond au temps nécessaire pour que la quantité de gaz dans la cavité soit divisée par deux [Hol73a]. Leur théorie suppose une expérience idéale dans laquelle le sodium est chauffé de manière infiniment rapide d'une température initiale  $T'$  à  $T$ , et tenu à  $T$  pendant un certain temps durant lequel s'effectue la diffusion de gaz à partir des crevasses. Leur modèle considère une cavité à volume constant qui perd du gaz par diffusion plane à travers la surface du ménisque. Ils ont ainsi calculé  $\tau_d$  pour une poche de gaz conique de rayon  $1 \mu\text{m}$  et de profondeur  $5 \mu\text{m}$  contenant de l'argon pour plusieurs températures du sodium (tableau II.1). Il est clair, d'après le tableau II.1, que  $\tau_d$  diminue fortement avec la température.

$T(^{\circ}\text{C})$	$\tau_d \text{ (s)}$
500	200 000
600	6000
700	400
800	40
900	6
1000	1

Tableau II.1 : Constante de temps  $\tau_d$  de la perte de gaz de la crevasse par diffusion [Hol73a].

Enfin, il existe un dernier effet de la température. Celui-ci est d'ailleurs celui dont l'impact sur  $\phi_G$  doit être le plus important. Il s'agit de la variation de l'angle de contact apparent et donc de  $\theta_A$  avec la température (cf. § I.3.4.1 et I.3.4.2). Il est clair que si  $\theta_A$  diminue jusqu'à une valeur inférieure à celle donnée par la relation (II.35), alors le liquide

avancera progressivement vers le fond des crevasses. Comme il a été précisé au § II.3.2, si  $\theta_A$  diminue jusqu'à devenir inférieur à  $\beta + \pi/2$ , la pénétration du liquide ne pourra plus être stoppée et les poches de gaz se dissoudront complètement. Cette diminution de  $\theta_A$  peut être brutale suite au déclenchement d'une réaction de surface entre les oxydes et le sodium. Cependant, le plateau et la pente brutale qui suit, observés à la figure I.11, ne sont pas forcément le signe d'une variation brutale de l'angle  $\theta_A$  local au-delà d'un seuil de température (environ 300°C). Ce comportement de mouillage peut s'expliquer aussi par l'accélération du processus de dissolution des poches de gaz sous la goutte avec la température alors que  $\theta_A$  pourrait diminuer de façon relativement douce sur toute la gamme de températures.

La combinaison de ces trois effets fournit donc une interprétation à l'observation selon laquelle la température à laquelle un bon couplage acoustique est observé est la même que celle à laquelle le mouillage est observé ( $\theta^* < 90^\circ$ ). Dans cette interprétation, le mouillage se traduit par une dissolution des poches de gaz.

En extrapolant les données du tableau II.1 à une température de 180°C, il apparaît que la diffusion de gaz à partir de ces cavités s'effectue sur plusieurs jours. Les raisonnements précédents s'appliquent pour des états d'équilibre consécutifs à des changements d'état du système (variation de la pression hydrostatique ou du niveau de saturation du liquide). Il est donc important de garder à l'esprit que la modification des poches de gaz suite à un changement d'état du système s'effectue sur des durées relativement longues. Pour pouvoir statuer sur la faisabilité de certaines pistes de solutions, l'étude des phénomènes de diffusion de gaz au niveau des poches de gaz doit être approfondie.

## **II.4. Influence de la pression hydrostatique et du niveau de saturation en gaz : Expériences**

### **II.4.1. Influence de la pression hydrostatique**

Une expérience simple, constituant une première approche pour étudier l'effet de la pression hydrostatique, a été réalisée au LCND. Elle consiste à mesurer l'amplitude du signal ultrasonore transmis au travers d'un échantillon rugueux et hydrophobe en fonction de la pression hydrostatique. Il s'agit de vérifier expérimentalement que  $h_{Lmax}$  existe pour un liquide saturé. Il s'agit par ailleurs de déterminer une valeur de  $h_L$ , inférieure à  $h_{Lmax}$ , pour laquelle il est très probable que le ménisque reste ancré à l'embouchure du trou, c'est-à-dire pour laquelle l'interface composite est stabilisée vis-à-vis de la dissolution.

#### II.4.1.1. Procédure expérimentale

Deux échantillons sont utilisés correspondant chacun à une série de mesure. Il s'agit des échantillons fins à trous cylindriques T1 et T2 (cf. § I.4.1.1.2). Les échantillons ont subi un traitement de façon à être hydrophobes et leur hydrophobie a été vérifiée par des essais de goutte posée ( $\theta^* > 90^\circ$ ). Pour les deux échantillons, les trous cylindriques ont un rayon  $r$  d'environ  $16\ \mu\text{m}$  et une profondeur  $h$  d'environ  $30\ \mu\text{m}$ . Il a été montré au § II.3.3.1 que, si l'échantillon est immergé dans de l'eau saturée à une profondeur  $h_L$ , inférieure à  $h_{Lmax}$ , le ménisque ne touchera pas le fond du trou si  $h > pf_{max}$ . D'après la relation (II.26), même en prenant la valeur très excessive de  $180^\circ$  pour  $\theta_A$ ,  $pf_{max}$  ne dépassera pas  $16\ \mu\text{m}$ . Ainsi le ménisque ne risque pas de toucher le fond du trou.

Lors d'une série de mesures, l'échantillon est immergé dans l'eau entre deux transducteurs identiques de fréquence centrale 1 MHz. Le premier transducteur, qui fait face à la surface gravée de l'échantillon, émet des impulsions ultrasonores qui sont transmises en incidence normale au travers de l'échantillon et enregistrées par le transducteur récepteur.

L'amplitude du signal transmis est mesurée pour différentes profondeurs d'immersion de l'échantillon. La profondeur d'immersion correspond à la hauteur d'eau au-dessus de la zone de l'échantillon soumise aux ultrasons. Celle-ci varie de 14 à 44 cm. L'échantillon est conservé immergé pendant toute la série de mesures et pour chaque point de mesure, la durée d'immersion, la profondeur d'immersion et l'amplitude crête-à-crête  $Acc$  de l'écho transmis à travers l'échantillon sont enregistrés. L'écart temporel entre deux mesures peut varier de 1 à 30 minutes.

Les traducteurs utilisés sont fixés sur un système mécanique permettant de régler leur position par rapport à l'échantillon et la perpendicularité de ce dernier par rapport à l'axe du faisceau ultrasonore. L'ensemble est immergé dans une cuve à ultrasons remplie d'eau à température ambiante ( $23^\circ\text{C}$  environ) et ouverte à l'air libre. L'eau a été laissée au repos pendant plus de trois jours. Au moment de l'expérience, elle est donc considérée comme saturée par l'air ambiant à la pression atmosphérique.

#### II.4.1.2. Résultats

Hormis pour quelques points de mesure qui seront précisés, l'échantillon n'a pas été sorti de l'eau durant les deux séries de mesures illustrées aux figures II.10 et II.11. Pour les deux échantillons, les résultats montrent qu'au-delà d'une certaine profondeur, l'amplitude crête-à-crête  $Acc$  augmente avec le temps même si cette augmentation est relativement lente. Cette

profondeur seuil semble se situer entre 140 et 240 mm. Si la profondeur est ramenée à sa valeur minimale (140 mm), l'augmentation de  $Acc$  s'arrête mais  $Acc$  ne diminue jamais. Par ailleurs, il semble que la vitesse d'augmentation de  $Acc$  augmente avec la profondeur. Pour l'échantillon T1, il a été vérifié que lorsque l'échantillon est sorti de l'eau puis séché et à nouveau réintroduit dans l'eau,  $Acc$  retrouve sa valeur de départ (deux derniers points de mesure de la figure II.11).

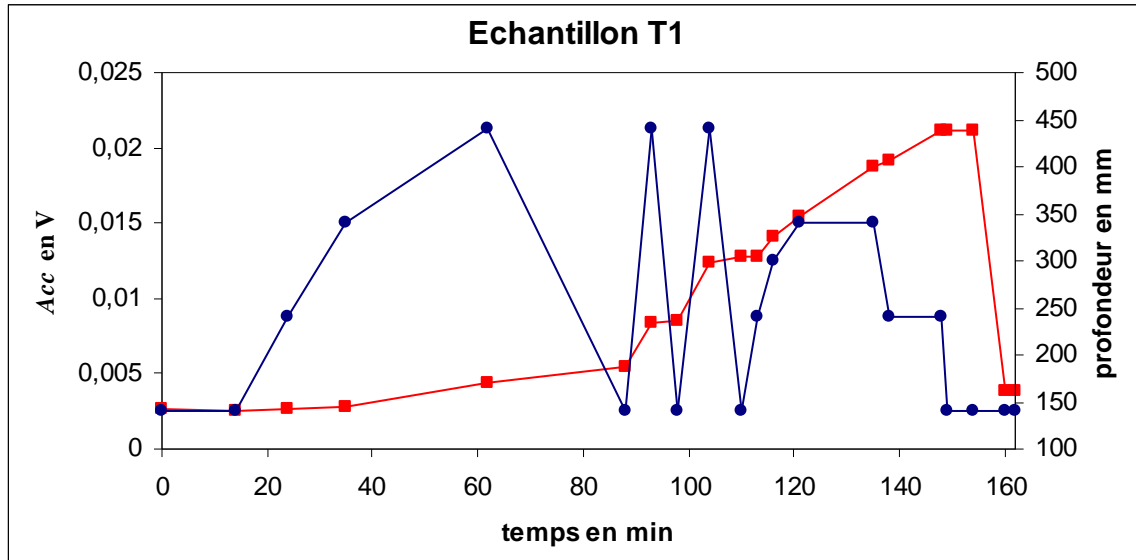


Figure II.10 : Amplitude crête-à-crête du signal ultrasonore transmis au travers de l'échantillon T1 (en rouge) et profondeur  $h_L$  d'immersion de l'échantillon dans l'eau (en bleu) en fonction de la durée d'immersion.



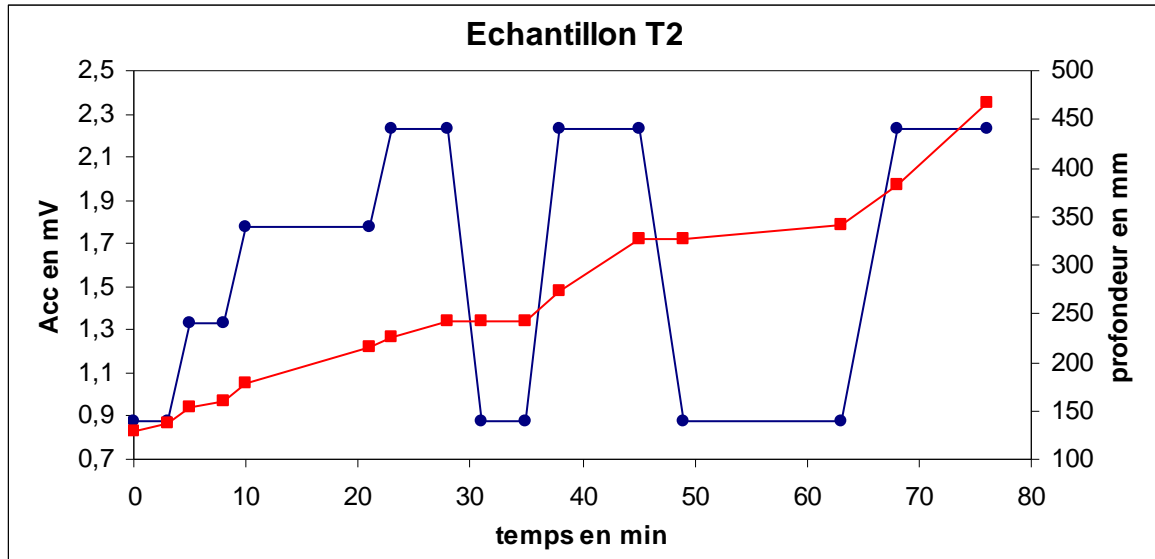


Figure II.11 : Amplitude crête-à-crête du signal ultrasonore transmis au travers de l'échantillon T2 (en rouge) et profondeur  $h_L$  d'immersion de l'échantillon dans l'eau (en bleu) en fonction de la durée d'immersion.

#### II.4.1.3. Interprétations et discussion

Les résultats montrent que l'influence de  $h_L$  est significative sur la valeur de l'amplitude ultrasonore transmise à l'interface composite. Cette variation de  $Acc$  peut être interprétée en considérant une variation de l'impédance acoustique de la couche d'épaisseur  $h$  au contact de l'eau d'un côté et du silicium de l'échantillon de l'autre. Cette variation d'impédance peut être associée soit à une variation de  $\phi_G$ , soit à une diminution de l'épaisseur de la couche "fractionnée" de gaz contenue dans les trous. La variation de  $\phi_G$  correspondrait au fait que la valeur locale de  $\theta_A$  n'est pas homogène pour tous les trous et qu'une augmentation de la pression hydrostatique conduirait au remplissage en eau de certains trous pour lesquels  $\theta_A$  est le plus faible. La diminution de l'épaisseur de la couche "fractionnée" de gaz contenue dans les trous correspondrait à la pénétration progressive de l'eau dans les trous. Le volume des poches de gaz dans les trous diminuerait et ainsi la contribution du gaz dans l'impédance acoustique de la couche d'épaisseur  $h$  serait diminuée. Etant donnée la lenteur de l'augmentation de  $Acc$  avec le temps, il est possible que cette augmentation résulte de la pénétration du liquide, dont la vitesse de pénétration serait limitée par un processus de diffusion du gaz (des poches de gaz vers le liquide). En réalité, il est possible que ces deux phénomènes se combinent et conduisent tous deux à une augmentation du coefficient de transmission acoustique à l'interface composite. Cet aspect sera étudié plus en détail au dernier chapitre.

La stabilité d'une poche de gaz dans un trou cylindrique a été étudiée théoriquement au § II.3.3.1. Dans l'expérience décrite ici, l'eau est considérée comme saturée par l'air ambiant. Par conséquent, la relation (II.25) doit pouvoir être appliquée. Celle-ci permet de calculer la profondeur maximale  $h_{Lmax}$  à ne pas dépasser pour s'assurer que la ligne de contact reste ancrée à une position donnée dans la crevasse. D'après l'expérience, il semble que  $h_{Lmax}$  soit comprise entre 140 et 240 mm. D'après (II.25), en prenant  $\rho = 1000 \text{ kg/m}^3$ ,  $\gamma_{LV} = 0,07 \text{ J/m}^2$  [Guy01] et  $g = 9,81 \text{ m/s}^2$ , cela correspond à un angle d'avance compris entre  $99^\circ$  et  $106^\circ$  environ. En prenant un coefficient de sécurité, lié notamment aux variations de pression engendrées lors de l'immersion de l'échantillon, il est raisonnable de penser que le ménisque restera ancré à l'embouchure des trous si la profondeur  $h_L$  ne dépasse jamais 100 mm. Pour les échantillons épais, en supposant que l'angle d'avance soit le même que pour ces deux échantillons, le rayon des trous cylindriques étant plus petit (inférieur ou égal à  $15 \mu\text{m}$ ), cette profondeur de 100 mm introduit un coefficient de sécurité encore plus grand.

Lorsque  $h_L$  est réimposée à sa valeur minimale après avoir été imposée à sa valeur maximale,  $Acc$  ne diminue pas. Cela pourrait s'expliquer avec la théorie exposée plus haut : si l'angle de recul  $\theta_R$  est suffisamment petit, c'est-à-dire tel que  $h_{Lmin}$  calculé à partir de (II.34), est inférieure à la profondeur minimale de 140 mm, alors le liquide ne pourra jamais remonter vers l'embouchure des trous lors de l'expérience. La pénétration de l'eau dans les trous est alors irréversible.

Cette expérience constitue un point de départ pour une éventuelle perspective de programme expérimental beaucoup plus approfondi. Une nouvelle expérience où les conditions expérimentales seraient mieux maîtrisées pourrait ainsi être menée afin de confirmer les conclusions suggérées ici.

## II.4.2. Influence du niveau de saturation

Beznosov *et al.* [Bez04] ont cherché à évaluer expérimentalement "l'état" de l'interface entre l'eutectique plomb-bismuth liquide (caloporteur lourd utilisé dans certains types de RNR) et l'acier 12Kh18N10T (matériau de structure des réacteurs utilisant du plomb-bismuth). Pour cela, ils ont mené des études ultrasonores de transmission à cette interface. Cependant, ils n'ont pratiquement pas interprété leurs résultats. Une interprétation est proposée ici en se basant sur le raisonnement développé au § II.3.3.2.

#### II.4.2.1. Présentation du dispositif expérimental

Le sondage ultrasonore de l'interface a été fait avec un signal de fréquence 8 MHz. L'intervalle de temps entre deux impulsions ultrasonores est de 2 ms (1/500 Hz). Les signaux acoustiques se propageant à travers le volume de liquide étudié et les interfaces sont véhiculés par deux guides d'ondes, l'un assurant leur émission et l'autre leur réception. Le signal ultrasonore se propage le long du guide d'ondes émetteur, se réfléchit à l'interface oblique matériau de structure-métal liquide, est transmis à travers deux interfaces et la couche de métal liquide, et se réfléchit une fois encore à l'interface oblique similaire du guide récepteur (Fig. II.12). L'amplitude ultrasonore mesurée dépend de l'état de phase du milieu dans le volume contrôlé. La présence d'une phase gazeuse ou d'un dépôt d'impuretés de densité inférieure à celle du métal liquide entraîne un amortissement des ultrasons. Au cours de cette étude, l'influence du mouillage de l'acier par le métal liquide sur l'amplitude du signal ultrasonore aux deux interfaces est étudiée. Il s'agit de mesurer la variation de l'amplitude du signal ultrasonore en fonction de la pression absolue (0,01-5 MPa) du gaz de couverture du volume de liquide. Ces études expérimentales ont été réalisées pour différentes températures.

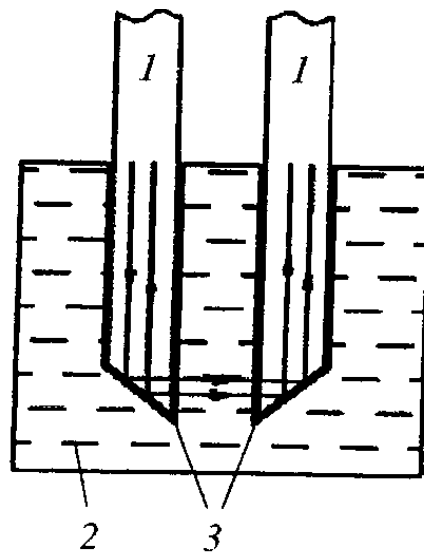


Figure II.12 : Propagation des ondes ultrasonores : 1) guide d'ondes; 2) métal liquide lourd; 3) couche d'oxydes [Bez04].

#### II.4.2.2. Résultats

L'allure de la variation de l'amplitude du signal ultrasonore en fonction de la variation (rapide) de pression du gaz de couverture a la forme d'une boucle d'hystérésis (Fig. II.13.a). Par ailleurs, il a été observé que la vitesse d'augmentation de la pression du gaz de couverture

influence la nature de la variation de l'amplitude du signal. Pour une augmentation douce de la pression du gaz sur une période maintenue, la nature de la variation du signal est différente de celle avec obtenue avec une augmentation brutale de pression (Fig. II.13.b). Pour une pression augmentant doucement, l'augmentation en amplitude n'est pas clairement observée; les indications se situent dans la gamme 0,8-1,2 V. Une augmentation brutale en pression induit une augmentation brutale de l'amplitude du signal de 0,6 à 3,3 V. Une diminution brutale de la pression n'améliore pas la transmission de l'onde acoustique.

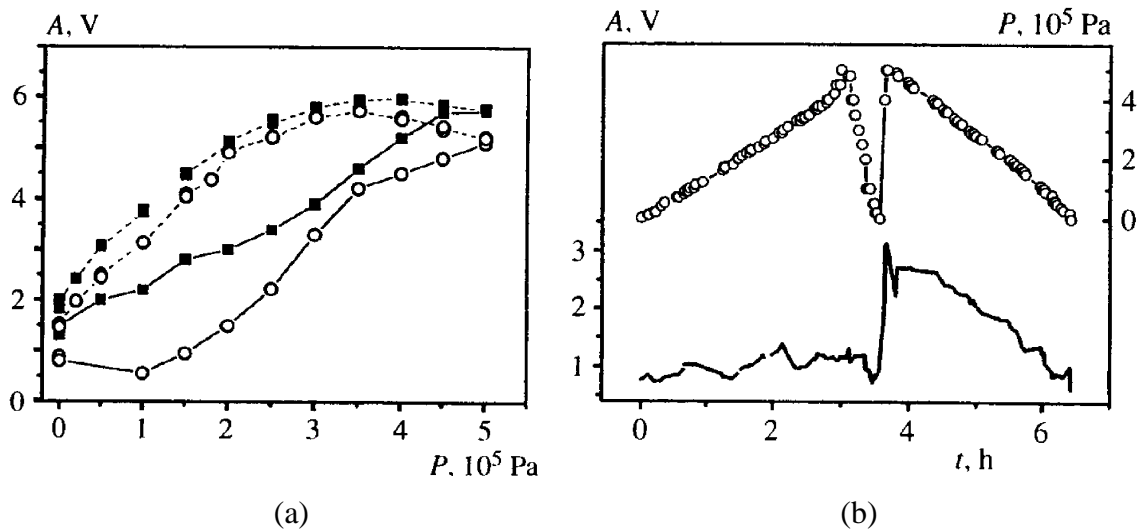


Figure II.13 : (a) Amplitude du signal ultrasonore en fonction de l'augmentation (—) et de la diminution de (---) de pression dans du plomb-bismuth liquide à 400 (■) et à 450°C (○). (b) Amplitude du signal ultrasonore (—) et pression (○) en fonction du temps à 450°C. [Bez04]

#### II.4.2.3. Interprétations et discussion

A ces niveaux de température (400 et 450°C), le plomb-bismuth ne mouille pas l'acier [Les02]. Ainsi, suivant la rugosité de la surface de l'acier, il est très possible que l'interface avec le plomb-bismuth soit composite. Les résultats de la figure 13 peuvent être interprétés en analysant le comportement de poches de gaz piégées par la surface rugueuse des guides d'ondes qui serait assimilée à la surface idéale de la figure II.8.

D'après (II.1), si la pression du gaz de couverture  $p_g$  augmente la concentration de saturation  $c_s$  augmente. Ainsi, d'après (II.6), le rapport de saturation diminue et induit  $\sigma < 0$  (cf. équation (II.7)) si le liquide était initialement saturé avant l'augmentation de température. Une augmentation rapide de  $p_g$  équivaut donc à une sous-saturation du plomb-bismuth liquide par rapport à son gaz de couverture. Dans ce cas, pendant la phase d'augmentation rapide de  $p_g$ ,  $\phi_G$  est donnée par la relation (II.36) et elle diminue avec  $p_g$ . Pendant la phase de

diminution rapide de  $p_g$ ,  $\phi_G$  augmente suivant la relation (II.36) dans laquelle  $\theta_A$  est remplacé par  $\theta_R$ .

Si à l'état d'équilibre initial, l'angle  $\theta$  satisfait (II.15) et (II.35) mais que sa valeur est beaucoup plus proche de  $\theta_R$  que de  $\theta_A$ , alors si  $p_g$  est augmentée, la variation de  $p_g$  se traduira seulement par une augmentation de  $\theta$  jusqu'à un certain seuil de  $p_g$  où  $\theta = \theta_A$ . Si  $p_g$  est augmentée au-delà de ce seuil, alors la relation (II.36) s'applique avec comme variable  $p_g$ , et  $\phi_G$  commence à diminuer, ce qui conduit à une augmentation de l'amplitude ultrasonore. De la même façon, lorsque la variation de  $p_g$  s'inverse,  $\theta$  est encore égal à  $\theta_A$ , et  $\phi_G$  ne commencera à augmenter que lorsque  $\theta$  aura atteint  $\theta_R$ . Si l'on considère que l'amplitude du signal ultrasonore transmis aux deux interfaces composites augmente de façon monotone quand  $\phi_G$  diminue, il est alors évident que l'allure de la variation de l'amplitude du signal ultrasonore en fonction de la variation (rapide) de  $p_g$  ait la forme d'une boucle d'hystérésis (Fig. II.13.a). Dans cette interprétation, la boucle d'hystérésis serait donc liée à l'hystérésis de l'angle de contact local. Dans le cas réel, les angles  $\theta$ ,  $\theta_A$  et  $\theta_R$  seraient des valeurs locales moyennes représentatives du caractère aléatoire de la rugosité réelle.

L'observation faite pour la figure II.13.b peut être interprétée en considérant l'échelle de temps du processus de diffusion du gaz à partir des crevasses. Si la variation de  $p_g$  est suffisamment lente, il peut être suggéré que, entre deux points de mesure, l'état d'équilibre du système est atteint. En d'autres mots, la durée entre deux points de mesures est supérieure au temps requis pour achever la diffusion du gaz, et donc le liquide a le temps de se saturer par rapport à son gaz de couverture. En revanche, suivant l'interprétation précédente, une augmentation brutale de pression, c'est-à-dire beaucoup plus rapide que l'échelle de temps de la diffusion, engendre une nette augmentation de l'amplitude ultrasonore transmise. La proposition inverse devrait être vraie aussi mais cela n'apparaît pas clairement sur la figure puisque la diminution brutale de pression s'effectue alors que l'amplitude ultrasonore est déjà très basse.

## II.5. Conclusion

Ce chapitre a été consacré à l'analyse des conditions de stabilité en régime quasi-statique des poches de gaz piégées à l'interface entre un solide rugueux et un liquide non mouillant.

Les notions de niveau de saturation en gaz d'un liquide et de nucléation de bulles ont tout d'abord été introduites. Le modèle de la crevasse a ensuite été présenté. Celui-ci permet de montrer que, contrairement à une bulle, une poche de gaz peut être stabilisée vis-à-vis de sa dissolution dans un liquide saturé et même sous-saturé. Le modèle de la crevasse issu de la littérature a été complété pour prendre en compte l'effet de la pression hydrostatique. En appliquant cette version du modèle à des géométries idéales de crevasses (cônes, cylindres et rainures à section rectangulaire et triangulaire), il a été montré que la pénétration du liquide dans les crevasses dépend de leur géométrie, des angles d'avance et de recul, du niveau de saturation du liquide et de la pression hydrostatique.

Il a été remarqué par ailleurs que, sous certaines conditions, l'hystérésis de l'angle de contact pouvait entraîner une pénétration irréversible du liquide. Ce processus pourrait être mis à profit, sous réserve d'un approfondissement, pour l'amélioration du couplage acoustique des TUSHT avec le sodium liquide.

Une analyse théorique à partir de ce modèle fournit aussi une nouvelle explication possible de l'amélioration du couplage acoustique obtenu avec les TUSHT lorsque la température du sodium est augmentée jusqu'à plus de 300°C. Dans cette interprétation, le mouillage se traduit par une dissolution des poches de gaz.

Enfin, l'analyse théorique du comportement des poches de gaz piégés par la rugosité idéale des échantillons a permis d'interpréter les résultats de deux expériences. La première, dans l'eau, examine l'effet de la pression hydrostatique. Les résultats semblent confirmer l'existence d'une profondeur maximale à ne pas dépasser pour s'assurer que le liquide ne pénètre pas dans les crevasses. La seconde, issue de la littérature, s'intéresse à l'influence du niveau de saturation en gaz d'un métal liquide lourd, le plomb-bismuth. Il est observé une boucle d'hystérésis qui pourrait être liée à l'hystérésis de l'angle de contact. Les résultats font aussi apparaître que l'échelle de temps de la diffusion du gaz au niveau des crevasses joue un rôle majeur dans le comportement des poches de gaz.

L'analyse du comportement des poches de gaz vis-à-vis du niveau de saturation du liquide et de la pression du liquide a donc permis de proposer des pistes de solutions permettant d'améliorer le couplage acoustique des TUSHT avec du sodium à 180°C. Cette analyse permettra aussi, au chapitre suivant, de mener des expériences destinées à étudier le comportement des poches de gaz soumises à un champ ultrasonore en garantissant leur stabilité quasi-statique.

## **Chapitre III : Comportement des poches de gaz suite à une variation de pression ultrasonore**

---

### **III.1. Introduction**

L'analyse du chapitre précédent concernant le comportement des poches en régime quasi-statique permet ici d'évaluer l'état initial des poches de gaz en garantissant leur stabilité quasi-statique avant leur exposition à un champ ultrasonore. L'objectif de ce chapitre est de prédire mais aussi d'observer expérimentalement le comportement des poches de gaz contenues dans les crevasses particulières des échantillons. En effet, par souci de simplicité mais aussi pour poursuivre les travaux antérieurs [Les04, Moy05] et apporter de nouveaux éléments d'interprétation, il a été choisi de se limiter au cas de rugosités contrôlées.

Tout d'abord le modèle de la crevasse, utilisé pour étudier le comportement des poches de gaz suite à une excitation acoustique de pression, est appliqué à la géométrie particulière des crevasses des échantillons. Cette modélisation, basée sur l'hypothèse que la fréquence d'excitation est inférieure à la fréquence de résonance, permet de prédire le mouvement du ménisque en fonction de la valeur de la pression acoustique.

Ensuite, la poche de gaz dans un trou cylindrique est considérée comme un oscillateur masse-ressort non amorti. Cela permet d'identifier les différents domaines fréquentiels de comportement de la poche de gaz vis-à-vis de sa fréquence de résonance. Celle-ci est estimée grâce à la définition d'une raideur, calculée à partir de l'analyse précédente, et d'une masse de radiation de la poche de gaz, alors considérée comme un piston plan.

Enfin, une expérience de visualisation est menée pour observer le comportement des poches de gaz contenues dans les rainures des échantillons fins. Il s'agit de savoir si les poches de gaz peuvent croître sous l'action des ultrasons et ainsi augmenter la fraction surfacique de gaz à l'interface. Il s'agit aussi de savoir si l'analyse développée à partir du modèle de la crevasse s'applique pour ce type de poches de gaz dont la fréquence de résonance n'a pas pu être estimée.

## **III.2. Le modèle de la crevasse appliqué à la cavitation acoustique**

Le modèle de la crevasse prédit le mouvement du ménisque en fonction de la valeur de la pression acoustique. Il sera appliqué à la géométrie particulière des crevasses des échantillons.

### **III.2.1. Bref historique de l'évolution du modèle**

Strasberg [Str59] a été le premier à appliquer le modèle de la crevasse à la cavitation acoustique et a été capable d'expliquer l'influence de niveau de saturation en gaz et de la pré-pressurisation du liquide sur le seuil de cavitation acoustique. Le seuil de cavitation acoustique est l'amplitude de pression qui doit être appliqué au liquide pour déclencher la cavitation. Apfel [Apf70] a étendu les résultats de Strasberg pour inclure l'influence de la pression de vapeur, de la température, et de la taille de la crevasse. Il a étudié le cas particulier de la cavitation induite par un champ acoustique basse fréquence. Crum [Cru79] a amélioré le modèle pour inclure l'effet de l'énergie de surface. Atchley et Prosperetti [Atc89] font remarquer que le critère de nucléation utilisé dans les travaux précédents [Har44, Str59, Apf70, Win77, Cru79, Tre87] est incomplet. En effet, il ne prend pas en compte le fait que le mouvement de l'interface entraîne à la fois une diminution de la pression de Laplace mais aussi une diminution de la pression de gaz  $p_G$ .

### **III.2.2. Le critère de nucléation réexaminé par Atchley et Prosperetti**

Il est clair que la diffusion de gaz vers l'intérieur ou l'extérieur du nucleus a un effet important. En effet, la vitesse à laquelle la pression du gaz varie est déterminée par la vitesse de diffusion du gaz entre la poche de gaz et le liquide de part et d'autre de l'interface. Si la diffusion est assez rapide pour faire en sorte que la pression du gaz diminue plus lentement que la pression de Laplace, l'analyse développée au chapitre II est adéquate. Dans le cas opposé, qui est celui considéré dans ce chapitre et qui a été analysé par Atchley et Prosperetti [Atc89], où la teneur en gaz est considérée comme restant constante, les différences entre les deux approches peuvent être importantes. Malheureusement, la diffusion de gaz à l'intérieur d'un nucleus est un problème très complexe et très peu connu. Par exemple, étant données les différences importantes en terme de géométrie et de dynamique de fluide, il n'est pas du tout évident que les analyses disponibles sur la diffusion rectifiée pour une bulle libre soit transposable au cas d'une poche de gaz piégée dans une crevasse. Atchley et Prosperetti



suggèrent que l'hypothèse d'une quantité de gaz constante dans la poche a une plus grande pertinence aux plus hautes fréquences de la cavitation acoustique (dans une gamme de quelques centaines de kHz ou de quelques MHz) où la diffusion de gaz apparaît moins efficace. Sa pertinence à des fréquences plus basses reste à établir. Le même argument amène à penser que, dans le cas de l'ébullition [Hol73a, b, Win77, Gal83, 85], où la pression interne dans le nucleus est principalement due à la vapeur et beaucoup plus faiblement aux gaz permanents, l'approche du chapitre II pourra être valablement appliquée.

Mathématiquement, la situation qui est décrite par Atchley et Prosperetti est caractérisée par l'analyse de la stabilité de la solution d'équilibre. Quand une solution instable est légèrement perturbée, les forces de contraction, c'est-à-dire celle due à l'énergie de surface et à la pression du liquide, ne sont pas assez fortes pour équilibrer les forces de dilatation, c'est-à-dire  $p_G + p_v$ .

### **III.3. Le modèle de la crevasse appliqué aux crevasses des échantillons**

Il s'agit ici d'appliquer le modèle de la crevasse, tel qu'il a été développé par Atchley et Prosperetti, aux géométries particulières des crevasses des échantillons (cf. § II.3.3.1).

#### **III.3.1. Hypothèses du modèle et relations de base**

La surface plane de la face des échantillons est lisse et cela permet de supposer que l'angle  $\theta_R$  mesuré par rapport à celle-ci est proche de  $\theta_Y$ . En revanche, la paroi cylindrique des crevasses étant rugueuses comme le montre la figure III.1, l'angle  $\theta_A$  mesuré par rapport aux parois de la crevasse est supposé être sensiblement supérieur à  $\theta_Y$  et en tout cas tel que :  $\pi/2 < \theta_Y < \theta_A$ .

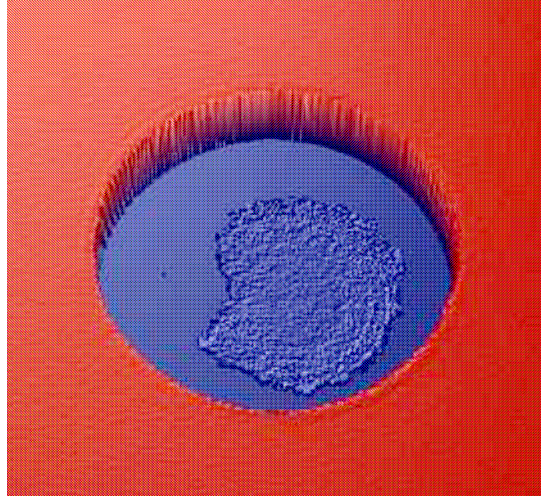


Figure III.1 : Image profilométrique d'un trou cylindrique d'un échantillon épais (profilométrie réalisée par J. Conti, CRMM)

Deux hypothèses sont utilisées : le liquide est incompressible et il est supposé que les effets dynamiques sont négligeables lorsque la pression du liquide au niveau de la poche de gaz varie à cause du passage d'une onde de pression acoustique  $p_A(t)$ , où  $t$  est le temps. Cette hypothèse est justifiée si la fréquence propre de la poche de gaz est très grande devant la fréquence d'excitation acoustique [Atc89]. Dans le raisonnement qui suit, puisque les effets dynamiques sont négligés, et pour alléger l'écriture, la dépendance ( $t$ ) de  $p_A(t)$  et des autres termes dépendant du temps ne sera plus notée. Par ailleurs, comme établi précédemment, il est supposé que la diffusion de gaz joue un rôle négligeable si bien que la teneur en gaz du nucleus reste constante. Enfin, le gaz dans la poche est supposé avoir un comportement polytropique [Lei95], tel que :

$$p_G V^\kappa = \text{constante}, \quad (\text{III.1})$$

où  $V$  est le volume de la poche de gaz et  $\kappa$  l'exposant polytropique.  $\kappa$  est compris entre  $\gamma$ , le rapport de la chaleur spécifique à pression constante à celle à volume constant, si le comportement du gaz est isentropique (adiabatique réversible) et l'unité s'il est isotherme.

Atchley et Prosperetti [Atc89], quant à eux, supposent que le comportement du gaz reste isotherme ( $\kappa = 1$ ), et ils le justifient en considérant que la diffusion thermique est plus rapide que la variation de volume provoquée par l'onde acoustique. Ainsi, si l'indice 0 est utilisé pour désigner les conditions initiales, la relation :

$$p_G V^\kappa = p_{G0} V_0^\kappa \quad (\text{III.2})$$

reste valide tout au long du processus du nucléation considéré. Pour le cas des rainures, cette relation peut traduire un comportement très différent de celui qui peut être attendu pour le cas

très simple du trou cylindrique. En effet, si la dimension de la zone de l'échantillon insonifiée par les ultrasons est très inférieure à la longueur des rainures, alors seule une petite portion de la poche de gaz située dans la zone insonifiée subira une variation de volume suite au mouvement du ménisque. Par conséquent, la variation du volume total de la poche de gaz suite à une variation assez localisée du volume pourra être négligeable. Dans ce cas, il est supposé que  $p_G$  reste constant et égal à  $p_{G0}$  pendant tout le passage de l'onde acoustique. En réalité, il est judicieux de supposer que le comportement de la poche de gaz dans la rainure se situe entre ce cas extrême (cas 2) où la variation du volume total  $V$  provoquée par  $p_A$  est négligeable, et l'autre cas extrême qui consiste à supposer que  $p_A$  est uniforme sur toute la longueur de la rainure et que les extrémités de la rainure sont supposées rigides et empêchent ainsi la fuite du gaz (cas 1). Ce dernier cas extrême est celui qui peut logiquement être attendu dans le cas des trous cylindriques. Les deux cas extrêmes seront traités pour la rainure et il sera alors mis en évidence des différences fondamentales quant au comportement du ménisque dans ces deux cas.

Les relations de base intervenant dans la description du comportement de la poche de gaz sont maintenant introduites. L'échantillon est immergé dans de l'eau saturé par l'air à la pression atmosphérique ( $\sigma = 0$  et  $G_s = p_{atm}$ ) à une profondeur  $h_L$  inférieure à  $h_{Lmax}$  donnée par l'équation II.25. L'état initial correspond donc à un état dans lequel la ligne de contact du ménisque est ancrée à l'embouchure de la crevasse et tel que le ménisque convexe du point de vue du gaz puisse être à l'équilibre (Fig. III.2) tel que :

$$\theta_R - \pi/2 < \theta_0 < \theta_A \quad (III.3)$$

où  $\theta_0$  et  $\theta_A$  sont mesurés par rapport aux parois de la crevasse et  $\theta_R$  est mesuré par rapport à la surface plane et lisse de la face de l'échantillon.

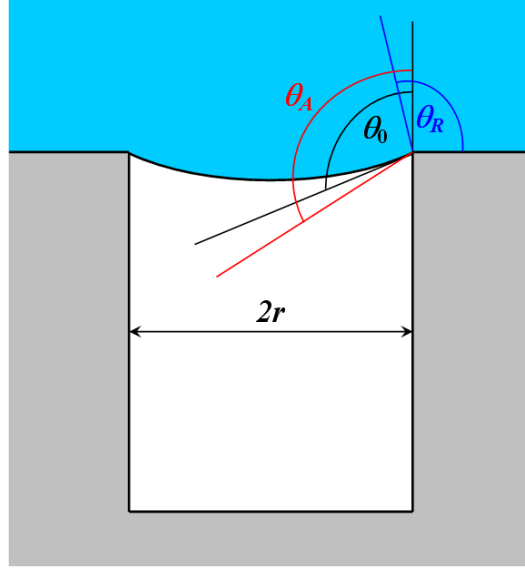


Figure III.2 : Etat initial : la ligne de contact du ménisque est ancrée à l'embouchure de la crevasse et le ménisque est convexe du point de vue du gaz et fait un angle  $\theta_0$  avec la paroi de la crevasse.

Puisque initialement la pression du gaz dans le nucleus est égal à la tension de gaz  $G_s = p_{atm}$  dans le liquide, la relation (III.2) devient :

$$p_G V^\kappa = p_{atm} V_0^\kappa \quad (III.4)$$

où  $V$  est donné par :

$$V = V_c + u_{LC} S_c + V_{cal}(\theta) \quad (III.5)$$

$S_c$  est la surface de la crevasse projetée sur la face de l'échantillon.  $S_c = \pi r^2$  pour un trou cylindrique et  $S_c = 2rl$  pour une rainure à section rectangulaire de longueur  $l$ .  $V_c$  est le volume de la crevasse tel que :  $V_c = S_c h$ .  $u_{LC}$  désigne le déplacement de la ligne de contact à l'intérieur de la crevasse.  $u_{LC}$  est nul lorsque le ménisque se trouve à l'embouchure de la crevasse (cf. figure III.2) ou sur le plan de la face de l'échantillon (cf. figure III.10), et il est négatif lorsque le ménisque est situé entre le fond et l'embouchure de la crevasse (cf. figure III.8).  $V_{cal}(\theta)$  est le volume "algébrique" de la calotte formée par le ménisque donné par :

$$V_{cal}(\theta) = \frac{1}{3} \pi r^3 \frac{(2 + \sin \theta) \cos \theta}{(1 + \sin \theta)^2} \quad (III.6)$$

pour un trou cylindrique, et :

$$V_{cal}(\theta) = \frac{l r^2}{2 \cos^2 \theta} (\pi - 2\theta - \sin 2\theta) \quad (III.7)$$

pour une rainure à section rectangulaire.  $V_0$  est alors tel que :  $V_0 = V(\theta = \theta_0, u_{LC} = 0)$ . Le déplacement du ménisque moyenné sur  $S_c$  est noté  $u_{PG}$ . Il est défini tel que :

$$u_{PG}(\theta, u_{LC}) = u_{LC} + V_{cal}(\theta)/S_c \quad (\text{III.8})$$

A l'état initial,  $\theta_0 \leq \theta_A$ , l'équation d'équilibre (II.24) donne :

$$\cos \theta_0 = -\frac{\rho g h_L r}{\Lambda \gamma_{LV}} \quad (\text{III.9})$$

$\theta_0$  est donc forcément supérieur à  $\pi/2$ .

A partir de la loi de Laplace (cf. annexe 1), la condition d'équilibre du ménisque est donnée par :

$$p_G + p_v = p_A + p_L(h_L) + \gamma_{LV} C \quad (\text{III.10})$$

avec  $C$  donné par :

$$C = \frac{\Lambda \cos \theta}{r_m} \quad (\text{III.11})$$

### III.3.2. Ménisque ancré à l'embouchure de la crevasse

Dans cette partie, le rayon du ménisque  $r_m$  est toujours égal à  $r$  et  $u_{LC} = 0$ .  $V$  est alors donné par :

$$V = V_c + V_{cal}(\theta) \quad (\text{III.12})$$

et  $u_{PG}$  par :

$$u_{PG} = V_{cal}(\theta)/S_c \quad (\text{III.13})$$

En utilisant la relation (II.3), la relation :  $p_{atm} + p_v = p_L(0)$ , (III.4) et (III.11) avec  $r_m = r$ , il vient :

$$p_{atm} \left( \left( \frac{V_0}{V(\theta)} \right)^\kappa - 1 \right) = p_A + \rho g h_L + \frac{\Lambda \gamma_{LV} \cos \theta}{r} \quad (\text{III.14})$$

Pour le cas extrême d'une variation négligeable du volume total de la poche de gaz dans la rainure (cas 2), le terme de gauche de cette équation est nul et il sera considéré nul pour toutes les situations traitées jusqu'à la fin du § III.3.

#### III.3.2.1. Mouvement du ménisque suite à une surpression

Dans ce cas,  $p_A > 0$  : la courbure du ménisque augmente tandis que la ligne de contact maintient sa position tant que  $\theta < \theta_A$ . Sont groupés du côté gauche de l'équation (III.14) les termes qui tendent à promouvoir la croissance de la poche de gaz et du côté droit ceux qui tendent à la contracter. Dans l'intervalle  $[\theta_0; \theta_A]$ , une augmentation de  $\theta$  induit une

diminution du dernier terme de l'ensemble de droite de l'équation (III.14) et donc une diminution des forces de contraction. Par ailleurs, une augmentation de  $\theta$  correspond à une diminution du volume du nucleus, c'est-à-dire à une augmentation de l'ensemble de gauche de (III.14), et induit donc une augmentation des forces d'expansion. Ainsi, tant que  $\theta$  appartient à  $[\theta_0; \theta_A]$ , l'équilibre gouverné par (III.14) est stable. D'après (III.14),  $\theta$  atteint  $\theta_A$  lorsque la pression acoustique  $p_A$  atteint  $p_{AA}$ , une "pression acoustique d'avance", définie telle que :

$$p_{AA} = p_{atm} \left( \left( \frac{V_0}{V(\theta_A)} \right)^\kappa - 1 \right) - \rho g h_L - \frac{\Lambda \gamma_{LV} \cos \theta_A}{r} \quad (\text{III.15})$$

### III.3.2.2. Mouvement du ménisque suite à une dépression

#### III.3.2.2.1. Ménisque convexe du point de vue du gaz

Dans ce cas,  $p_A < 0$  : la courbure diminue tandis que la ligne de contact maintient sa position tant que  $\theta > \theta_R$ . L'équation (III.14) est réécrite différemment :

$$p_{atm} \left( \left( \frac{V_0}{V(\theta)} \right)^\kappa - 1 \right) - p_A = \rho g h_L + \frac{\Lambda \gamma_{LV} \cos \theta}{r} \quad (\text{III.16})$$

Sont groupés du côté gauche de cette équation les termes qui tendent à promouvoir la croissance de la bulle et du côté droit ceux qui tendent à contracter la cavité. Dans l'intervalle  $[\pi/2; \theta_0]$ , une diminution de  $\theta$  (entraînant une augmentation du volume la poche de gaz) entraîne une diminution des forces d'expansion (termes de gauche de (III.16)) et une augmentation des forces de contraction (termes de droite de (III.16)). Ainsi, tant que  $\theta$  appartient à  $[\pi/2; \theta_0]$ , l'équilibre gouverné par (III.16) est stable. D'après (III.16),  $\theta$  atteint  $\pi/2$  lorsque  $p_A$  atteint  $p_{AP}$  telle que :

$$p_{AP} = p_{atm} \left( \left( \frac{V_0}{V_c} \right)^\kappa - 1 \right) - \rho g h_L \quad (\text{III.17})$$

### III.3.2.2.2. Ménisque concave du point de vue du gaz

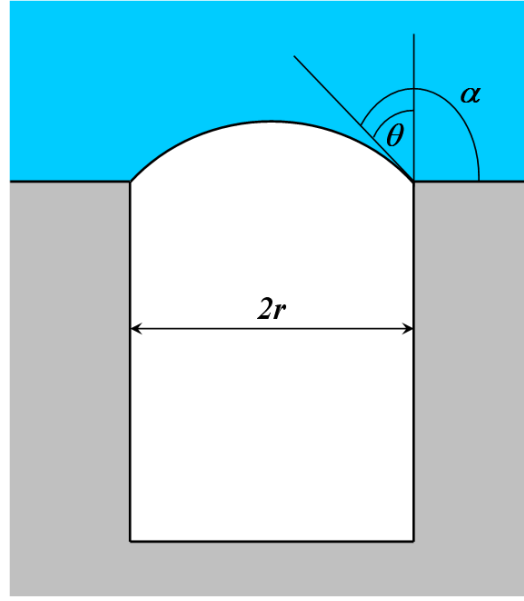


Figure III.3 : Géométrie de la poche de gaz telle que la ligne de contact est ancrée à l'embouchure de la crevasse et le ménisque est concave du point de vue du gaz.

Avant que l'interface puisse bouger hors de la crevasse et sur le plan, l'angle  $\alpha$  avec le plan (Fig. III.3), qui est égal à  $\pi$  quand l'interface est plane, doit diminuer jusqu'à  $\theta_R$ . L'angle  $\alpha$  est lié à  $\theta$  par la relation :

$$\alpha = \theta + \pi/2. \quad (\text{III.18})$$

$V$  est alors donné par :

$$V = V_c + V_{cal}(\alpha) \quad (\text{III.19})$$

avec, à partir de (III.6),  $V_{cal}(\alpha)$  donné par :

$$V_{cal}(\alpha) = \frac{1}{3} \pi r^3 \frac{(2 - \cos \alpha) \sin \alpha}{(1 - \cos \alpha)^2} \quad (\text{III.20})$$

pour un trou cylindrique, et, à partir de (III.7) :

$$V_{cal}(\alpha) = \frac{l r^2}{2 \sin^2 \alpha} (2\pi - 2\alpha + \sin 2\alpha) \quad (\text{III.21})$$

pour une rainure à section rectangulaire de longueur  $l$ .

A partir de (III.18), l'équation d'équilibre (III.16) devient :

$$p_{atm} \left( \left( \frac{V_0}{V(\alpha)} \right)^\kappa - 1 \right) - p_A = \rho g h_L + \frac{\Lambda \gamma_{LV} \sin \alpha}{r} \quad (\text{III.22})$$

Sont groupés du côté gauche de cette équation les termes qui tendent à promouvoir la croissance de la bulle et du côté droit ceux qui tendent à contracter la cavité. Dans l'intervalle

$[\pi; \theta_R]$ , une diminution de  $\alpha$  (entraînant une augmentation du volume la poche de gaz) entraîne une diminution des forces d'expansion (termes de gauche de (III.22)) et une augmentation des forces de contraction (termes de droite de (III.22)). Ainsi, tant que  $\alpha$  appartient à  $[\pi; \theta_R]$ , l'équilibre gouverné par (III.22) est stable. D'après (III.22),  $\alpha$  atteint  $\theta_R$  lorsque  $p_A$  atteint  $p_{AR}$ , une "pression acoustique de recul", telle que :

$$p_{AR} = p_{atm} \left( \left( \frac{V_0}{V(\theta_R)} \right)^\kappa - 1 \right) - \rho g h_L - \frac{\Lambda \gamma_{LV} \sin \theta_R}{r} \quad (III.23)$$

### III.3.2.3. Résultats numériques et discussion

Pour illustrer les différentes situations qui viennent d'être décrites, les résultats sont tracés avec comme valeurs des différentes données :

- la pression atmosphérique  $p_{atm} = 101350$  Pa,
- la profondeur d'immersion de l'échantillon ou plus précisément la hauteur d'eau au-dessus de la zone insonifiée par les ultrasons :  $h_L = 100$  mm,
- la masse volumique de l'eau  $\rho = 1000$  kg/m<sup>3</sup>,
- l'accélération de la pesanteur :  $g = 9,81$  m/s<sup>2</sup>,
- la tension superficielle de l'eau (ou énergie interfaciale eau – air) :  $\gamma_{LV} = 0,07$  J/m<sup>2</sup>,
- la profondeur de la crevasse :  $h = 30$  μm,
- la dimension caractéristique de la crevasse, c'est-à-dire le rayon du trou cylindrique  $r = 5, 10$  et  $15$  μm, ou la demi-largeur de la rainure :  $r = 10$  μm,
- l'exposant polytropique  $\kappa = 1$ .

L'abscisse des différentes courbes tracées en fonction de  $\theta$  correspond à une plage s'étalant de  $\theta = \theta_R - 90^\circ$  (correspondant à  $\alpha = \theta_R$ ) à  $\theta_A$  avec comme valeurs arbitraires :

- $\theta_R = 100^\circ$  mesuré par rapport à la surface plane et lisse de la face de l'échantillon,
- $\theta_A = 120^\circ$  mesuré par rapport aux parois de la crevasse.

Les courbes de la figure III.4 ont été tracées à titre indicatif. Elles sont issues de la relation (III.13). Elles montrent, bien évidemment, que lorsque  $\theta = 90^\circ$ ,  $u_{PG} = 0$ . Elles montrent aussi qu'à cause de l'effet de canthotaxie, la concavité du point de vue du gaz, lors d'une phase dépression, peut être très importante et sensiblement plus que la convexité obtenue lors de la phase de surpression. En outre, il est clair que plus  $r$  est grand, plus la valeur absolue de  $u_{PG}$  et la variation de volume induite sont grandes.



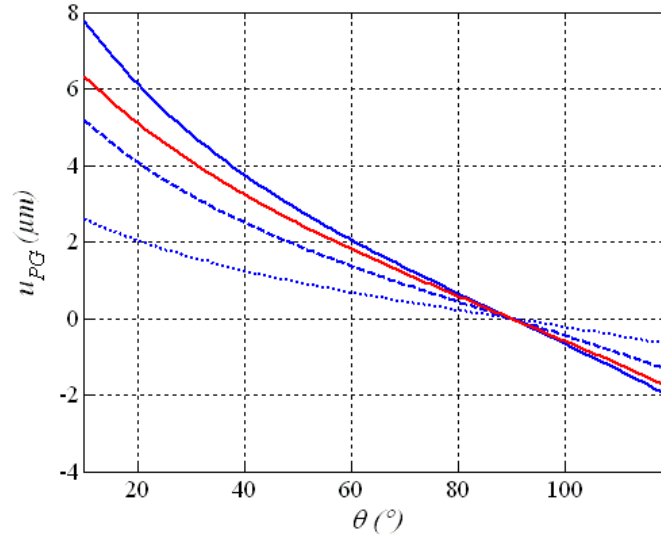


Figure III.4 : Courbe de  $u_{PG}$  en fonction de  $\theta$ . En rouge : rainure et en bleu : trous cylindriques. En trait continu :  $r = 15 \mu m$ , en trait tireté :  $r = 10 \mu m$ , et en trait pointillé :  $r = 5 \mu m$ .

Les courbes de la figure III.5 indiquent la valeur de la pression acoustique nécessaire pour que l'angle  $\theta$  adopte une certaine valeur. Pour les trous cylindriques et pour la rainure dans le cas 1,  $p_{AR}$  se situe entre  $-25$  et  $-40$  kPa et  $p_{AA}$  entre  $7$  et  $15$  kPa. Ce sont des valeurs qui peuvent aisément être atteintes avec des capteurs classiques de contrôle non destructif. La valeur de  $\theta_0$  est donnée par l'intersection des courbes avec la droite  $p_A = 0$ . Il est rappelé que cette valeur peut être calculée directement à partir de (III.9). Il apparaît que le ménisque de la rainure (toujours dans le cas 1) est déformé plus facilement par  $p_A$  que ne le sont ceux des trous cylindriques. Il est enfin remarquable que le ménisque de la rainure dans le cas 2 est nettement plus facilement déformé que les autres. D'après les courbes, il suffirait d'une pression acoustique supérieure à  $3$  kPa pour que le ménisque avance vers le fond de la rainure (cf. § III.3.3). Une pression acoustique inférieure à  $-8$  kPa serait suffisante pour le faire reculer sur la surface plane de l'échantillon (cf. § III.3.4).

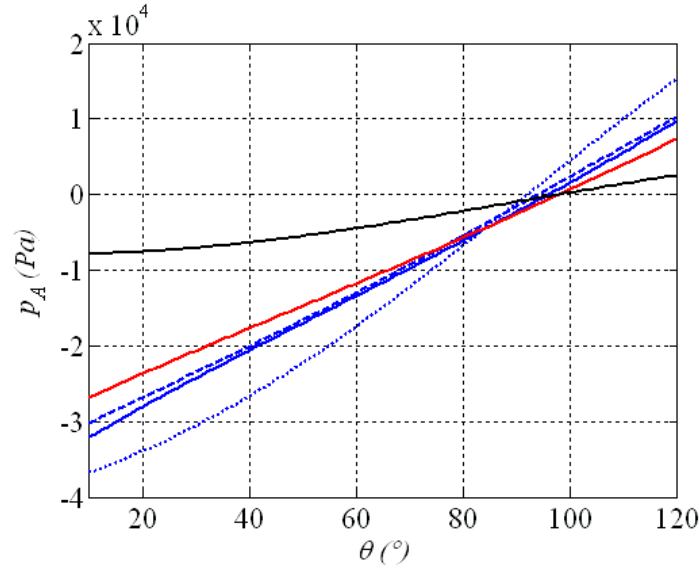


Figure III.5 : Courbe de  $p_A$  en fonction de  $\theta$ . En rouge : rainure dans le cas 1, en noir : rainure dans le cas 2, et en bleu : trous cylindriques. En trait continu :  $r = 15 \mu\text{m}$ , en trait tireté :  $r = 10 \mu\text{m}$ , et en trait pointillé :  $r = 5 \mu\text{m}$ .

Les courbes de la figure III.6 indiquent que la variation de  $\kappa$  entre 1 et  $\gamma$  ( $\gamma = 1,4$  pour l'air) n'induit pas de changement très important du comportement du ménisque vis-à-vis de la pression acoustique. Comme il paraissait évident, plus  $\kappa$  est élevé, plus la valeur absolue de la pression nécessaire pour déformer le ménisque est importante.

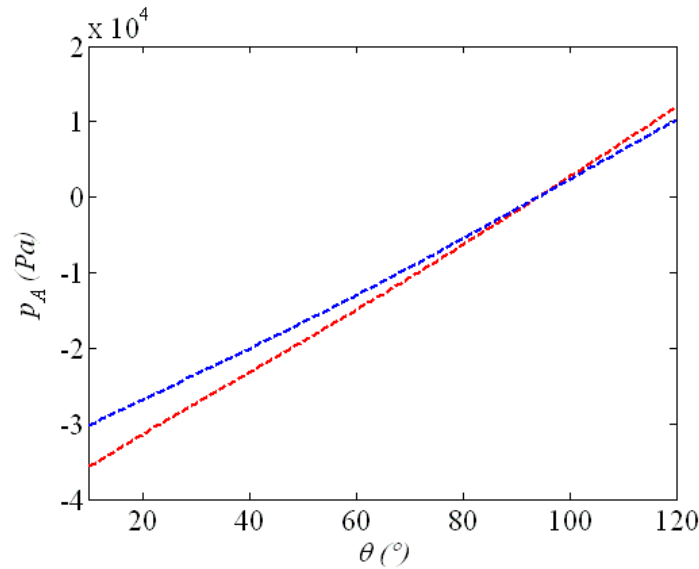


Figure III.6 : Courbe de  $p_A$  en fonction de  $\theta$  pour un trou cylindrique avec  $r = 10 \mu\text{m}$ . En bleu :  $\kappa = 1$  et en rouge :  $\kappa = 1,4$ .

La figure III.7 indique que la variation de  $h_L$  entre 0 et  $h_L = 100 \text{ mm}$  (valeur maximale à ne pas dépasser pour s'assurer, avec un coefficient de sécurité, que  $\theta_0 < \theta_A$ ) n'induit pas de

changement très important du comportement du ménisque vis-à-vis de la pression acoustique. Cette variation, de 0 à 100 mm, provoque simplement un léger décalage vertical de la courbe correspondant à la valeur de dépression nécessaire pour ramener le ménisque à la planéité. Bien évidemment, lorsque  $h_L$  est fixée à une valeur nulle (purement théorique), alors d'après la courbe rouge, le ménisque est plan ( $\theta = 90^\circ$ ) lorsque  $p_A = 0$ .

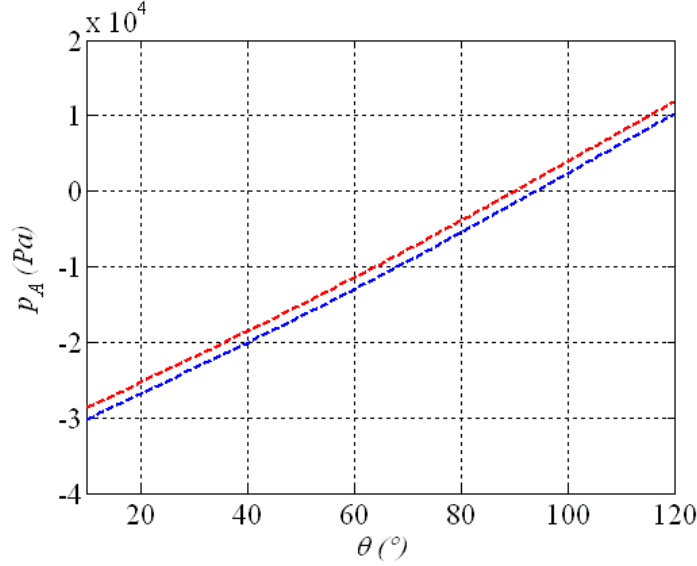


Figure III.7 : Courbe de  $p_A$  en fonction de  $\theta$  pour un trou cylindrique avec  $r = 10 \mu\text{m}$ . En bleu :  $h_L = 100 \text{ mm}$  et en rouge :  $h_L = 0 \text{ mm}$ .

### III.3.3. Déplacement du ménisque vers le fond de la crevasse

Cette étape consiste à étudier le déplacement de la ligne de contact vers le fond de la crevasse. Il peut être utile en effet de se faire une idée du niveau de pression acoustique nécessaire pour provoquer un déplacement significatif du ménisque, voire pour le faire toucher le fond de la cavité. Le ménisque commence à se déplacer vers le fond de la crevasse lorsque  $p_A > 0$  et  $p_A > p_{AA}$ . L'angle de contact est fixé à la valeur  $\theta_A$  et  $u_{LC} < 0$  (Fig. III.8). Dans ce cas, où  $V$  est donné par :

$$V(\theta_A, u_{LC}) = V_c + u_{LC} S_c + V_{cat}(\theta) \quad (\text{III.24})$$

L'équilibre (III.7) devient alors :

$$p_{atm} \left( \left( \frac{V_0}{V(\theta_A, u_{LC})} \right)^\kappa - 1 \right) = p_A + \rho g h_L + \frac{\Lambda \gamma_{LV} \cos \theta_A}{r} \quad (\text{III.25})$$

Sont groupés du côté gauche de cette équation les termes qui tendent à promouvoir la croissance de la bulle et du côté droit ceux qui tendent à contracter la cavité. Une diminution de  $u_{LC}$  (entraînant une diminution du volume la poche de gaz) entraîne une augmentation des

forces d'expansion (termes de gauche de (III.25))) tandis que les forces de contraction (termes de droite de (III.25)) restent constantes. Ainsi, l'équilibre gouverné par (III.25) est stable quel que soit la valeur de  $u_{LC}$ .

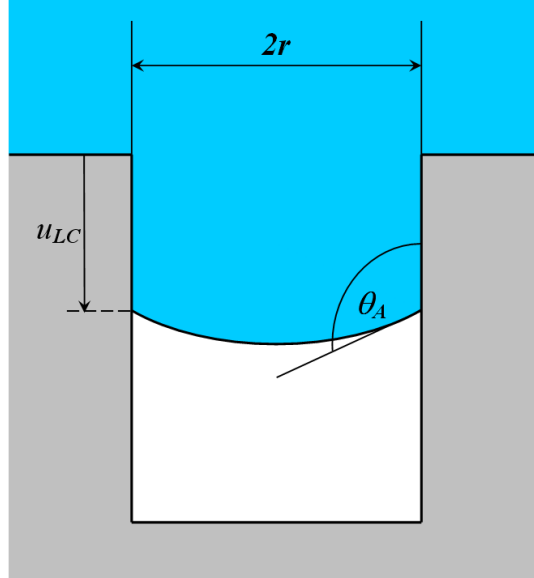


Figure III.8 : la ligne de contact du ménisque a avancé vers le fond de la crevasse tout en conservant l'angle  $\theta_A$ .

Les courbes de la figure III.9 indiquent la valeur de la pression acoustique nécessaire pour que la ligne de contact avance d'une certaine distance  $u_{LC}$  vers le fond de la crevasse. Cette valeur de pression acoustique doit être supérieure à  $p_{AA}$  donnée par (III.15) et par l'intersection des courbes avec l'axe des abscisses  $u_{LC} = 0$ . A titre indicatif, il faut que  $p_A$  se situe entre 30 et 40 kPa, c'est-à-dire augmente d'environ 20 kPa par rapport à  $p_{AA}$ , pour que le ménisque se déplace de 5  $\mu\text{m}$  vers le fond de la crevasse. Le cas 2 de la rainure n'a pas été représenté car il suffit que  $p_A$  soit juste supérieure à  $p_{AA}$  pour que le déplacement soit enclenché et ne puisse plus être arrêté hormis par le fond de la crevasse. Cela est dû au fait que, lorsque la pression de Laplace due à la courbure du ménisque est dépassée, il n'existe plus aucune résistance à la diminution de volume de la poche de gaz.

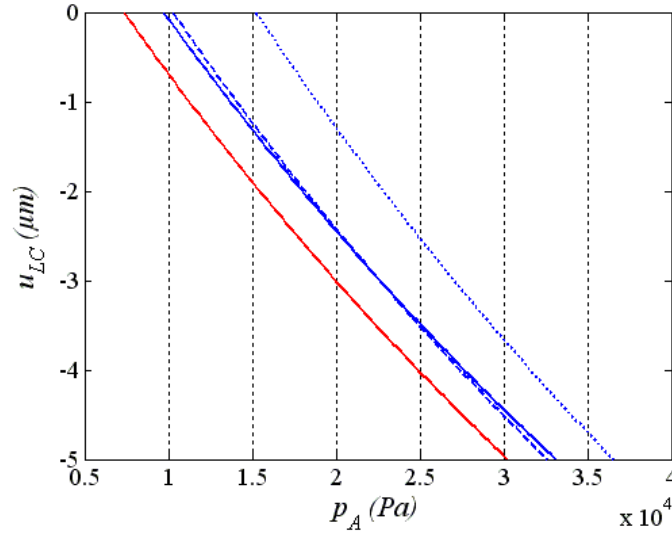


Figure III.9 : Courbe de  $u_{LC}$  en fonction de  $p_A$ . En rouge : rainure et en bleu : trous cylindriques. En trait continu :  $r = 15 \mu m$ , en trait tiré :  $r = 10 \mu m$ , et en trait pointillé :  $r = 5 \mu m$ .

### III.3.4. Déplacement du ménisque hors de la crevasse

La dernière étape consiste à étudier le mouvement de la ligne de contact hors de la crevasse sur le plan de la face de l'échantillon (Fig. III.10). Cette situation conduirait à une augmentation de la fraction surfacique de gaz à l'interface et donc probablement à une diminution de la transmission à l'interface.

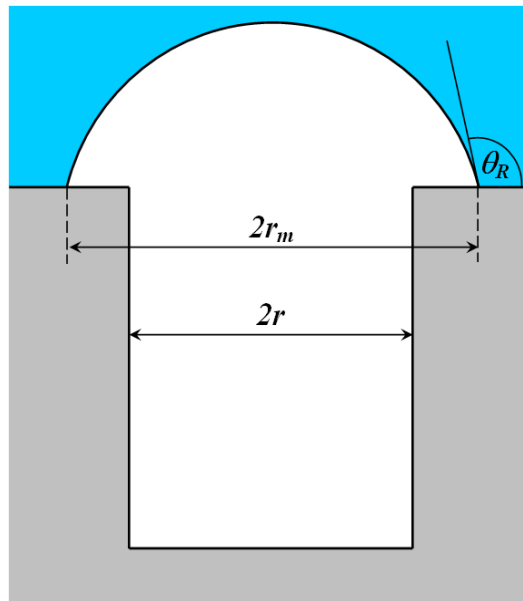


Figure III.10 : la ligne de contact du ménisque est sortie hors de la crevasse sur le plan de la face de l'échantillon tout en conservant l'angle  $\theta_R$ .

Cette situation se produit lorsque  $p_A < 0$  et  $|p_A| > |p_{AR}|$ . Maintenant, l'angle de contact est fixé à la valeur  $\theta_R$  et le rayon du ménisque  $r_m$  est supérieur à celui de l'embouchure de la crevasse. En reprenant la démarche du § III.3.3, l'équation d'équilibre est alors :

$$p_{atm} \left( \left( \frac{V_0}{V(\theta_R, r_m)} \right)^\kappa - 1 \right) - p_A = \rho g h_L + \frac{\Lambda \gamma_{LV} \sin \theta_R}{r_m} \quad (\text{III.26})$$

et  $V$  est donné par :

$$V = V_c + V_{cal}(\theta_R, r_m) \quad (\text{III.27})$$

avec  $V_{cal}(\theta_R, r_m)$  tel que :

$$V_{cal}(\theta_R, r_m) = \frac{1}{3} \pi r_m^3 \frac{(2 - \cos \theta_R) \sin \theta_R}{(1 - \cos \theta_R)^2} \quad (\text{III.28})$$

pour un trou cylindrique, et :

$$V_{cal}(\theta_R, r_m) = \frac{l r_m^2}{2 \sin^2 \theta_R} (2\pi - 2\theta_R + \sin 2\theta_R) \quad (\text{III.29})$$

pour une rainure à section rectangulaire de longueur  $l$ .

Les termes de gauche de (III.26) tendent à promouvoir la croissance de la bulle et les termes de droite tendent à contracter la cavité. Une augmentation de  $r_m$  (entraînant une augmentation du volume la poche de gaz) entraîne une diminution des forces d'expansion (termes de gauche de (III.26)) et une diminution des forces de contraction (termes de droite de (III.26)). La stabilité de l'équilibre gouverné par (III.26) dépend donc de la vitesse de diminution avec  $r_m$  des termes de gauche et de droite.

Les courbes de  $r_m(p_A)$  (Fig. III.11) sont tracés à partir de l'équation (III.26) et de (III.28) pour les trois dimensions de trous cylindriques, et à partir de (III.29) pour la rainure de section rectangulaire. Elles montrent que les poches de gaz, dans les trous cylindriques et dans la rainure, semblent subir une croissance stable jusqu'à ce que la dépression acoustique atteigne environ  $-100$  kPa. Pour  $p_A < -110$  kPa, il apparaît clairement, en tout cas pour les trous cylindriques de rayon  $5 \mu\text{m}$ , que la poche de gaz subit une croissance instable.

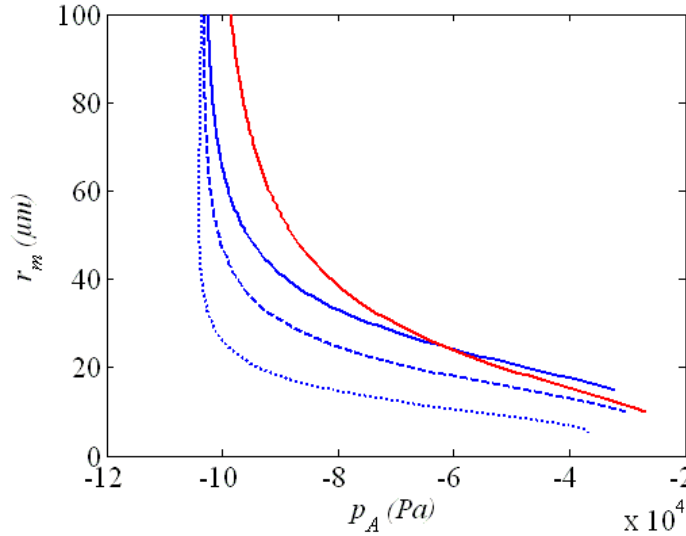


Figure III.11 : Courbes  $r_m(p_A)$  tracés à partir de l'équation (III.26) et de (III.28) pour les trois dimensions de trous cylindriques, et à partir de (III.29) pour la rainure de section rectangulaire. En rouge : rainure et en bleu : trous cylindriques. En trait continu :  $r = 15 \mu\text{m}$ , en trait tireté :  $r = 10 \mu\text{m}$ , et en trait pointillé :  $r = 5 \mu\text{m}$ .

Pour le cas extrême d'une variation négligeable du volume total de la poche de gaz dans une rainure (cas 2), le terme de gauche de (III.26) est constant tandis que le terme de droite diminue avec  $r_m$ . Par conséquent, dans ce cas-là, pour une dépression acoustique supérieure en valeur absolue à  $p_{AR}$  (donnée par (III.23) avec le premier terme de l'ensemble de gauche égal à zéro) la poche de gaz subira une croissance instable. Cette croissance instable de la bulle, si la fréquence d'excitation est suffisamment faible pour que la poche de gaz ait le temps de croître suffisamment pendant la période de dépression de l'onde acoustique, pourrait conduire à une coalescence des poches de gaz. C'est d'ailleurs ce que suggère Lesueur [Les04] dans ses conclusions.

### III.3.5. Conclusion sur cette analyse

Il faut toutefois bien garder à l'esprit que toute l'analyse développée dans ce § III.3 est basée sur l'hypothèse que les effets inertiels du mouvement du ménisque sont négligeables. Cette hypothèse se justifie si la fréquence propre de la poche de gaz est très grande devant la fréquence d'excitation acoustique. Si ce n'est pas le cas, alors l'inertie du ménisque peut résister à la déformation et au déplacement du ménisque et ainsi empêcher toute pénétration du liquide dans la crevasse (telle qu'elle a été décrite au § III.3.2), ou toute croissance instable de la poche (telle que décrite au § III.3.3). Le paragraphe suivant va permettre de déterminer et de borner les différents régimes fréquentiels de comportement de la poche de gaz.

Il sera déduit que le domaine fréquentiel dans lequel se situent les différentes expériences ultrasonores décrites dans la suite de ce chapitre et au chapitre suivant ne correspond pas au régime "basse fréquence" étudié dans cette partie. L'analyse de ce régime basse fréquence aura permis d'apporter des éléments de prédiction qu'il serait intéressant de vérifier expérimentalement. Il a été fait le choix de développer cette analyse sur des géométries de crevasses qui sont celles des échantillons car ces échantillons pourront être réutilisés pour une éventuelle tentative de validation expérimentale.

Par ailleurs, un approfondissement de l'analyse pourrait permettre de la généraliser à des géométries de crevasse plus complexes se rapprochant des géométries caractéristiques d'une rugosité résultant d'un usinage mécanique. Suivant la géométrie et les dimensions de la rugosité mais aussi suivant la fréquence de l'outil de contrôle ultrasonore, il pourrait d'ailleurs s'avérer que ce régime basse fréquence soit applicable. Cela pourrait être le cas par exemple si les poches de gaz étaient beaucoup plus petites (fréquence de résonance plus élevée) que celles des échantillons. Ils s'agiraient alors de poursuivre le travail de Atchley et Prosperetti [Atc89] qui ont appliqué leur modèle de crevasse à des géométries coniques creusées dans une surface pas forcément plane. De plus, Chappell et Payne [Cha07] ont étendu leur modèle à quatre autres géométries de crevasses axisymétriques.

### **III.4. Régimes fréquentsiels de comportement de la poche de gaz**

Leighton [Lei95] a analysé la dynamique de l'oscillation d'une poche de gaz "linéaire" (qu'il appelle aussi "bulle à une dimension") en la comparant à celle du système idéalisé masse-ressort non-amorti classique. L'oscillateur masse-ressort idéal diffère de l'oscillateur masse-ressort réel à la fois en ce qui concerne la raideur mais aussi en ce qui concerne l'inertie. Dans la réalité, la raideur est indépendante du déplacement seulement à de très faibles amplitudes. En effet, si le ressort est allongé au-delà de sa limite élastique, le mouvement dépend alors de l'historique du système. Concernant l'inertie, dans le modèle idéalisé, elle est totalement issue de la masse. Pour l'oscillateur masse-ressort réel, en revanche, l'accélération de la masse induit aussi une accélération dans le ressort. Par ailleurs, pour provoquer le déplacement de la masse, en plus de fournir de l'énergie cinétique à la masse et au ressort, il faut fournir de l'énergie cinétique à la quantité de gaz environnant le système déplacé lors du mouvement du système. La contribution inertielle du fluide environnant est caractérisée par ce qui est appelée la masse de radiation  $m_r$ .



Ces différences par rapport à l'oscillateur masse-ressort idéal sont accentuées pour une poche de gaz. En effet, il sera montré plus loin que la raideur de la poche de gaz dépend du déplacement du ménisque. De plus, pour l'oscillateur masse-ressort réel la masse de radiation est généralement négligeable comparée à l'inertie de la masse. En revanche pour du gaz piégé dans une cavité au sein d'un liquide, l'inertie associée à l'accélération du liquide est beaucoup plus grande que celle associée au gaz. Par conséquent, la masse du gaz dans la poche sera considérée négligeable par rapport à la masse de radiation.

Si la poche de gaz est considérée comme un oscillateur non-amorti [Lei95], l'équation gouvernant le mouvement du ménisque, issue de la seconde loi de Newton, est donnée par :

$$m_r \ddot{u}_{PG}(t) + k_{PG} u_{PG}(t) = F(t) \quad (\text{III.30})$$

où  $F(t)$  est une force extérieure s'exerçant sur le ménisque,  $k_{PG}$  est la raideur de la poche de gaz pour des oscillations de faible amplitude, et  $m_r$  est la masse de radiation due au liquide entraîné par le mouvement du ménisque. Il s'agit d'un comportement conservatif qui néglige les pertes par frottement visqueux. La fréquence propre  $f_{PG}$ , ou fréquence de résonance, est alors déterminée par la relation :

$$f_{PG} = \frac{\omega_{PG}}{2\pi} = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k_{PG}}{m_r}}. \quad (\text{III.31})$$

où  $\omega_{PG}$  est la pulsation propre de la poche de gaz. En divisant de part et d'autre de l'équation (III.30) par  $S_c$  et en considérant que  $F(t)$  est la force s'exerçant sur le ménisque associée à la pression acoustique  $p_A$ , cette équation devient :

$$M_r \ddot{u}_{PG}(t) + K_{PG} u_{PG}(t) = -p_A(t) \quad (\text{III.32})$$

où  $M_r$  et  $K_{PG}$  représentent respectivement la masse de radiation surfacique et la raideur surfacique de la poche de gaz et sont liés à  $m_r$  et  $k_{PG}$  par les relations :

$$m_r = S_c M_r, \quad (\text{III.33})$$

$$k_{PG} = S_c K_{PG}. \quad (\text{III.34})$$

$\omega_{PG}$  peut alors s'exprimer telle que :

$$\omega_{PG} = \sqrt{\frac{K_{PG}}{M_r}}. \quad (\text{III.35})$$

Si  $p_A$  est une fonction harmonique telle que :

$$p_A(t) = P_A \cos(\omega t), \quad (\text{III.36})$$

alors, en utilisant la notation complexe, l'équation (III.32) devient :

$$M_r \ddot{y} + K_{PG} y = -P_A e^{i\omega t} \quad (\text{III.37})$$

où  $y$  est l'équivalent complexe de  $u_{PG}$ . La recherche d'une solution  $y = Y e^{i\omega t}$  conduit à :

$$(M_r \omega^2 - K_{PG}) Y = P_A. \quad (\text{III.38})$$

Cette équation peut se réécrire sous la forme :

$$Y = H(\omega) P_A \quad (\text{III.39})$$

où  $H(\omega)$  représente la fonction de transfert qui décrit la réponse du système en fonction de la pulsation et a pour expression :

$$H(\omega) = \frac{1}{M_r \omega^2 - K_{PG}}. \quad (\text{III.40})$$

Elle peut s'exprimer en module et en argument :

$$H(\omega) = |H| e^{i\varphi} \quad (\text{III.41})$$

Ainsi,  $y = |H| P_A e^{i(\omega t + \varphi)}$ , et la partie réelle est :

$$u_{PG} = |H| P_A \cos(\omega t + \varphi) \quad (\text{III.42})$$

L'amplitude  $U_{PG}$  de  $u_{PG}$  est donnée par :

$$U_{PG} = |H(\omega)| P_A = \frac{P_A}{|M_r \omega^2 - K_{PG}|}. \quad (\text{III.43})$$

A une excitation sinusoïdale, ce système linéaire fait correspondre une réponse sinusoïdale de même pulsation. De même, à une somme de sinusoïdes, qui est la décomposition d'une impulsion ultrasonore de capteur amorti, peut correspondre une somme de sinusoïdes. Pour chacune d'entre elles, le module et l'argument de la fonction de transfert  $H(\omega)$  représentent respectivement l'amplification et le déphasage.

D'après les expressions (III.40) et (III.43), l'amplification croît avec un déphasage  $\varphi$  égal à  $-\pi$  à partir de la valeur  $P_A/K_{PG}$ , qui correspond à la situation telle que  $f \ll f_{PG}$  (hypothèse de départ de tout le raisonnement du § III.3) jusqu'à l'infini lorsque  $f = f_{PG}$ . Ensuite, elle décroît jusqu'à zéro avec un déphasage nul. Si  $f > f_{PG}$ , les effets dynamiques ne peuvent plus être négligés comme cela a été fait au § III.3 (et au contraire ils deviennent même prépondérants pour  $f \gg f_{PG}$ ). Dans ce cas, le déplacement du ménisque  $u_{PG}$  est donné par :

$$u_{PG} = |H| P_A = \frac{P_A}{M_r \omega^2 - K_{PG}}. \quad (\text{III.44})$$

### III.4.1. Raideur de la poche de gaz

Leighton [Lei95] calcule la raideur de sa poche de gaz en négligeant l'effet de la pression de Laplace puisqu'il néglige la courbure du ménisque. Il considère ainsi simplement la contribution de la résistance à la compression et à la traction du gaz de la poche. Dans ce qui suit, la contribution de la pression de Laplace est prise en compte dans le calcul de  $k_{PG}$ . Si la poche de gaz est considérée comme un ressort de raideur surfacique  $K_{PG}$ , alors d'après la troisième loi de Newton, suite à un petit déplacement du ménisque  $du_{PG}$ , la poche de gaz répond en appliquant une pression  $-K_{PG} du_{PG}$ . Si  $dp$  représente une petite variation de pression du liquide qui s'applique sur le ménisque telle que  $dp > 0$  pour une surpression et  $dp < 0$  pour une dépression, alors  $K_{PG}$  est donnée par :

$$K_{PG} = -\frac{dp}{du_{PG}}. \quad (\text{III.45})$$

Au repos, si le ménisque est ancré à l'embouchure de la crevasse tel que  $u_{LC} = 0$ , et qu'il adopte un angle d'équilibre  $\theta_0$ , alors (III.45) devient :

$$K_{PG} = -\left(\frac{dp_A}{d\theta}\right)_{\theta_0} \left(\frac{dV(\theta)}{d\theta}\right)_{\theta_0}^{-1} \left(\frac{dV}{du_{PG}}\right)_0 \quad (\text{III.46})$$

Charlaix et Gayvallet [Cha92] utilisent cette même expression dans leur étude traitant des propriétés dynamiques d'une interface fluide. De (III.14), il vient :

$$\left(\frac{dp_A}{d\theta}\right)_{\theta_0} = -\frac{\kappa p_{atm}}{V_0} \left(\frac{dV}{d\theta}\right)_{\theta_0} + \frac{\Lambda \gamma_{LV} \sin \theta_0}{r} \quad (\text{III.47})$$

D'après (III.12) et (III.13), il vient :

$$\left(\frac{dV}{du_{PG}}\right)_0 = S_c \quad (\text{III.48})$$

En introduisant (III.47) et (III.48) dans (III.46), il vient :

$$K_{PG} = S_c \left[ \frac{\kappa p_{atm}}{V_0} - \left(\frac{dV}{d\theta}\right)_{\theta_0}^{-1} \frac{\Lambda \gamma_{LV} \sin \theta_0}{r} \right] \quad (\text{III.49})$$

avec, à partir de (III.12) et (III.6) :

$$\left(\frac{dV}{d\theta}\right)_{\theta_0}^{-1} = -\frac{(\sin \theta_0 + 1)^2}{\pi r^3} \quad (\text{III.50})$$

pour un trou cylindrique, et, à partir de (III.12) et (III.7) :

$$\left(\frac{dV}{d\theta}\right)_{\theta_0}^{-1} = -\frac{1}{lr^2} \frac{\cos^3 \theta_0}{2 \cos \theta_0 + (2\theta - \pi) \sin \theta_0} \quad (\text{III.51})$$

pour une rainure à section rectangulaire.

### III.4.2. Masse de radiation de la poche de gaz

Le cas d'une poche dans un trou cylindrique est seulement considéré ici. Dans le temps imparti pour la thèse, la masse de radiation d'une poche de gaz dans une rainure à section rectangulaire n'a pas pu être déterminé.

Le ménisque d'une poche de gaz dans un trou cylindrique peut, dans une certaine mesure, être assimilé à un piston plan bafflé. Il est en effet supposé, mais cela reste à démontrer, que le liquide entraîné par le mouvement du ménisque lors du passage de l'onde acoustique possède une masse apparente très proche de celle qu'un piston plan bafflé entrainerait.

Pour cela, il faut tout d'abord supposer que le déplacement de la ligne de contact est négligeable. Il faut aussi supposer que la courbure du ménisque, tout au long de l'excitation acoustique, reste très faible. C'est ce que fait Leighton [Lei95]. Il considère une poche de gaz cylindrique piégée au fond d'un tube fermé du côté de la poche de gaz et relié de l'autre côté au sommet d'un cône qui lui-même est fermé à sa base par un diaphragme. La seule partie de la poche de gaz non rigide est le ménisque la séparant du liquide. Le mouvement du ménisque est supposé être celui d'un piston plan. Il calcule ainsi la masse apparente de liquide entraîné par ce piston plan dans le tube et le cône. Dans la situation exposée ici, le volume de liquide entraîné par le piston plan bafflé n'a pas de limite rigide hormis la face plane de l'échantillon. L'expression de la masse de radiation est donc légèrement différente de celle de Leighton.

Pierce [Pie91] fournit une expression de la masse de radiation  $m_r$  d'un piston bafflé pour  $ka \ll 1$ , avec  $k = 2\pi f/c$  le nombre d'onde,  $c$  étant la vitesse de phase de l'onde acoustique (ou célérité), et  $a$  le rayon du piston qui correspond ici à  $r$  :

$$m_r = \frac{8}{3} \rho r^3. \quad (\text{III.52})$$

Dans le cas des trous cylindriques des échantillons expérimentaux immergés dans l'eau,  $c \approx 1483$  m/s est la vitesse de phase dans l'eau. Par ailleurs, la fréquence centrale des capteurs ultrasonores utilisés sera de 1, 2,25 et 5 MHz. Dans le cas le moins critique concernant le respect du critère  $ka \ll 1$ , les données  $r = 5 \mu\text{m}$  et  $f = 1$  MHz donne  $ka \approx 2 \%$ , et par conséquent, l'expression (III.52) peut être valablement appliquée. En revanche, dans le cas le

plus critique, où les données sont  $r = 15 \mu\text{m}$  et  $f = 5 \text{ MHz}$ ,  $ka$  avoisine 30 %. Dans ces cas où  $ka > 10 \%$ , il faudra donc être méfiant vis-à-vis de l'application de (III.52).

### III.4.3. Calcul de la fréquence propre des poches de gaz cylindriques

Il est supposé ici que le critère  $ka \ll 1$  est respecté est que par conséquent la masse de radiation peut être déterminée à partir de (III.52). En introduisant (III.49) (associée à (III.50)) et (III.52) dans (III.35), les pulsations et fréquences propres des poches de gaz piégées dans les trous cylindriques des échantillons expérimentaux peuvent être calculées. Ces valeurs sont calculées en utilisant les mêmes valeurs des différents paramètres utilisées précédemment. Elles sont regroupées dans le tableau III.1. Il est remarqué que ces valeurs ne varient presque pas avec  $h_L$ .

Trous cylindriques	$\omega_{PG} (\kappa = 1)$ en rad/s	$f_{PG} (\kappa = 1)$ en kHz	$\omega_{PG} (\kappa = 1,4)$ en rad/s	$f_{PG} (\kappa = 1,4)$ en kHz
$r = 5 \mu\text{m}$	2463	392	2527	402
$r = 10 \mu\text{m}$	1028	164	1103	176
$r = 15 \mu\text{m}$	680	108	755	120

Tableau III.1 : pulsations et fréquences propres des poches de gaz piégées dans les trous cylindriques des échantillons.

Les valeurs du tableau III.1 permettent de délimiter le domaine fréquentiel d'application de l'analyse développée § III.3 pour laquelle les effets inertiels peuvent être négligés. Par ailleurs, ce tableau indique que, pour tous les capteurs (de fréquence centrale 1, 2,25 et 5 MHz) qui seront utilisés dans les expériences, la fréquence de résonance des poches de gaz est inférieure à la plus basse fréquence de leur largeur de bande à  $-6 \text{ dB}$ . Ainsi le mouvement du ménisque ne pourra pas être décrit grâce à l'analyse du § III.3.

Comme la masse de radiation d'une poche de gaz dans une rainure à section rectangulaire n'a pas été déterminé, il ne sera pas possible non plus de déterminer sa fréquence propre. Il n'est ainsi pas possible, dans l'état actuel de l'analyse, de prédire le comportement de la poche de gaz sur un large domaine fréquentiel. Le comportement a été étudié dans un régime basse fréquence mais la limite fréquentielle de ce régime est inconnu. Si la fréquence d'excitation est très inférieure à la fréquence propre de la poche de gaz, alors le mouvement du ménisque peut être décrit grâce à l'analyse du § III.3. Il a été vu que les amplitudes du mouvement du ménisque pouvaient être très importantes et en particulier dans le cas extrême d'une variation négligeable du volume total de la poche de gaz. Des amplitudes de pression

acoustique de plusieurs dizaines de milliers de Pa, pourraient suivant le cas, produire une pénétration profonde du liquide dans la crevasse lors de la phase de surpression de l'onde acoustique, mais aussi une croissance instable de la poche hors de la crevasse lors de la phase de dépression.

## **III.5. Visualisation des poches de gaz soumises à un champ ultrasonore**

### **III.5.1. Contexte et objectif**

La présence du gaz à une interface composite entraîne une diminution très importante de l'énergie ultrasonore transmise [Les04]. Pour expliquer ce phénomène, Lesueur [Les04, Moy05] a formulé une hypothèse : les ultrasons pourraient provoquer une croissance des poches de gaz puis leur coalescence, c'est-à-dire la formation d'un film de gaz qui empêcherait la transmission des ultrasons. Cette hypothèse considère en fait que la fraction surfacique de gaz  $\phi_G$  présent à l'interface à l'état initial n'est pas suffisamment élevée pour expliquer une telle chute du coefficient de transmission. Par conséquent, elle présume que l'action des ultrasons fait augmenter  $\phi_G$ , et qu'ainsi le signal transmis à l'interface composite est représentatif de cette nouvelle valeur de  $\phi_G$ .

Dans l'eau, il est possible d'étudier l'hypothèse de coalescence grâce à l'observation directe du phénomène. C'est le but de l'expérience originale appelée OMICA [Pau06a, 06b, 07a, 07b] qui est présentée ici. Celle-ci consiste à visualiser la forme des ménisques des poches de gaz avant et pendant leur exposition à un champ ultrasonore. Il s'agit d'observer si ce champ ultrasonore provoque un grossissement des poches de gaz puis leur coalescence.

Pour cette expérience, les sept échantillons fins à rainures ainsi que l'échantillon fin de référence sont utilisés. Ce sont les mêmes échantillons que ceux utilisés dans [Moy05]. Dans des essais préliminaires (dont les résultats seront présentés au chapitre suivant), il a été vérifié, par des mesures ultrasonores en transmission, que les résultats obtenus avec les conditions expérimentales de cette présente expérience sont les mêmes que ceux obtenus par Lesueur [Moy05] dans des conditions légèrement différentes.

### **III.5.2. Tentative de justification de l'hypothèse de coalescence**

L'étude bibliographique [Lei94, Bre95, Bre05a, 05b, 06a, 06b] permet de faire certaines hypothèses quant au comportement des poches de gaz soumises à un champ ultrasonore.

Le phénomène de diffusion rectifiée peut entraîner une stabilisation des bulles contre la dissolution ou encore une croissance des bulles ou des poches de gaz. Ce processus s'effectue progressivement, sur plusieurs cycles d'ondes acoustiques, par diffusion prépondérante de gaz à l'interface liquide/gaz dans le sens liquide vers gaz [Lei94]. Dans le cas présent, il est vraisemblable que l'influence de la diffusion rectifiée soit négligeable car la fréquence utilisée est probablement trop élevée pour que la diffusion de gaz dans les poches de gaz soit significative. Il paraît donc impossible que la coalescence puisse se produire à cause de ce phénomène.

Dans plusieurs expériences assez similaires à celle présentée ici, Bremond *et al.* [Bre05a, 05b, 06a, 06b] utilisent un lithotripteur générant des dépressions acoustiques de quelques MPa. Celui-ci génère en fait des "tirs", c'est-à-dire des impulsions ultrasonores, de fréquence centrale supérieure à 100 kHz. Ils parviennent ainsi à faire dilater par cavitation acoustique des poches de gaz initialement complètement contenues dans des crevasses microscopiques. Cette dilatation se traduit par la formation de bulles ou plutôt de calottes hémisphériques de gaz au dessus de la crevasse dont le diamètre est très largement supérieur à celui de la crevasse.

Lorsqu'ils utilisent des substrats lisses hydrophobes en silicium avec une rugosité moyenne inférieure à 2 nm, ils provoquent la nucléation de bulles en imposant des tirs d'amplitudes négatives de  $-4$  et  $-11$  MPa [Bre05b]. Ils constatent que la densité des bulles nucléées est une fonction décroissante du nombre de tirs successifs quand le substrat est maintenu dans l'eau. La densité chute d'un facteur dix après 50 tirs, mais quelques événements de nucléation se produisent toujours après plusieurs centaines de tirs.

Lorsqu'ils utilisent des substrats avec des trous cylindriques microscopiques gravés [Bre05b] dans lesquelles le gaz est piégé lors de l'immersion du substrat, ces inclusions de gaz se dilatent après le passage de l'impulsion négative de pression (2 MPa). Elles peuvent atteindre une taille de l'ordre de cent fois leur taille initiale et finissent par s'effondrer après quelques dizaines de  $\mu$ s. D'autre part, les trous ne génèrent plus de bulles après un certain nombre de tirs successifs. Tout le gaz est libéré dans l'eau après quelques événements de cavitation. Bremond *et al.* remarquent que plus le diamètre du trou est petit, plus le nombre de tirs nécessaires pour enlever tout l'air piégé est grand. Ils suggèrent alors que les bulles nucléées sur la surface solide lisse proviennent de très petits nuclei, puisqu'elles sont encore générées après plusieurs dizaines de tirs.

Par ailleurs, ils ont pu observer une multicoalescence [Bre05a, 06b] entre des poches de gaz initialement contenues dans des trous cylindriques de diamètre ne dépassant pas 10  $\mu\text{m}$  et distantes de plusieurs dizaines de  $\mu\text{m}$  les unes des autres.

Ces expériences, en plus de montrer qu'une onde ultrasonore peut provoquer une croissance des poches de gaz voire même une coalescence, suggèrent l'idée que les ultrasons de forte puissance pourraient être utilisés pour "dégazer" une interface composite.

S'il est supposé que l'analyse théorique du § III.3 est applicable pour les présentes conditions expérimentales, ce qui suppose que la fréquence d'excitation ultrasonore est sensiblement inférieure à la fréquence de résonance des poches de gaz contenues dans les rainures, alors une croissance importante des poches de gaz peut être justifiée. En effet, le calcul de  $p_{AR}$  à partir de (III.23) pour le cas extrême 2 fournit une valeur sensiblement inférieure en valeur absolue à  $-10\text{kPa}$ , qui est l'ordre de grandeur de la dépression acoustique absolue mesurée avec un hydrophone à 72mm du capteur émetteur. De plus, dans cette expérience, le capteur émetteur est situé à environ 35 mm de la face gravée de l'échantillon, donc la valeur absolue de la dépression acoustique générée au niveau des poches de gaz doit être encore supérieure à 10 kPa. Ainsi, si dans la réalité la poche de gaz se comporte suivant le cas 2 et que sa fréquence de résonance est nettement supérieure à 1 MHz alors, d'après le raisonnement du § III.3, la poche de gaz devrait subir une croissance importante lors de la phase de dépression de l'onde acoustique. L'hypothèse de coalescence suggérerait alors que, dès le premier cycle de dépression de l'onde ultrasonore, les poches de gaz se dilatent tellement que la coalescence est obtenue immédiatement. Dans ce cas, l'intervalle de temps pour obtenir la coalescence serait alors très court, de l'ordre de la période ultrasonore, c'est-à-dire 1  $\mu\text{s}$  ou moins. Par ailleurs, il est très difficile de savoir si le film de gaz éventuellement formé serait assez stable pour ne pas disparaître au cycle de surpression immédiatement suivant, ou lorsque la pression acoustique s'annule.

### **III.5.3. Le dispositif expérimental**

Le dispositif expérimental comportant les quatre ensembles : l'ensemble mécanique, l'ensemble ultrasonore, l'ensemble optique et la chaîne d'acquisition des images est représenté schématiquement sur la figure III.12. Les échantillons sont immergés dans l'eau, à la température ambiante : environ 18°C, de telle façon que la face gravée et les rainures soient dirigées verticalement.



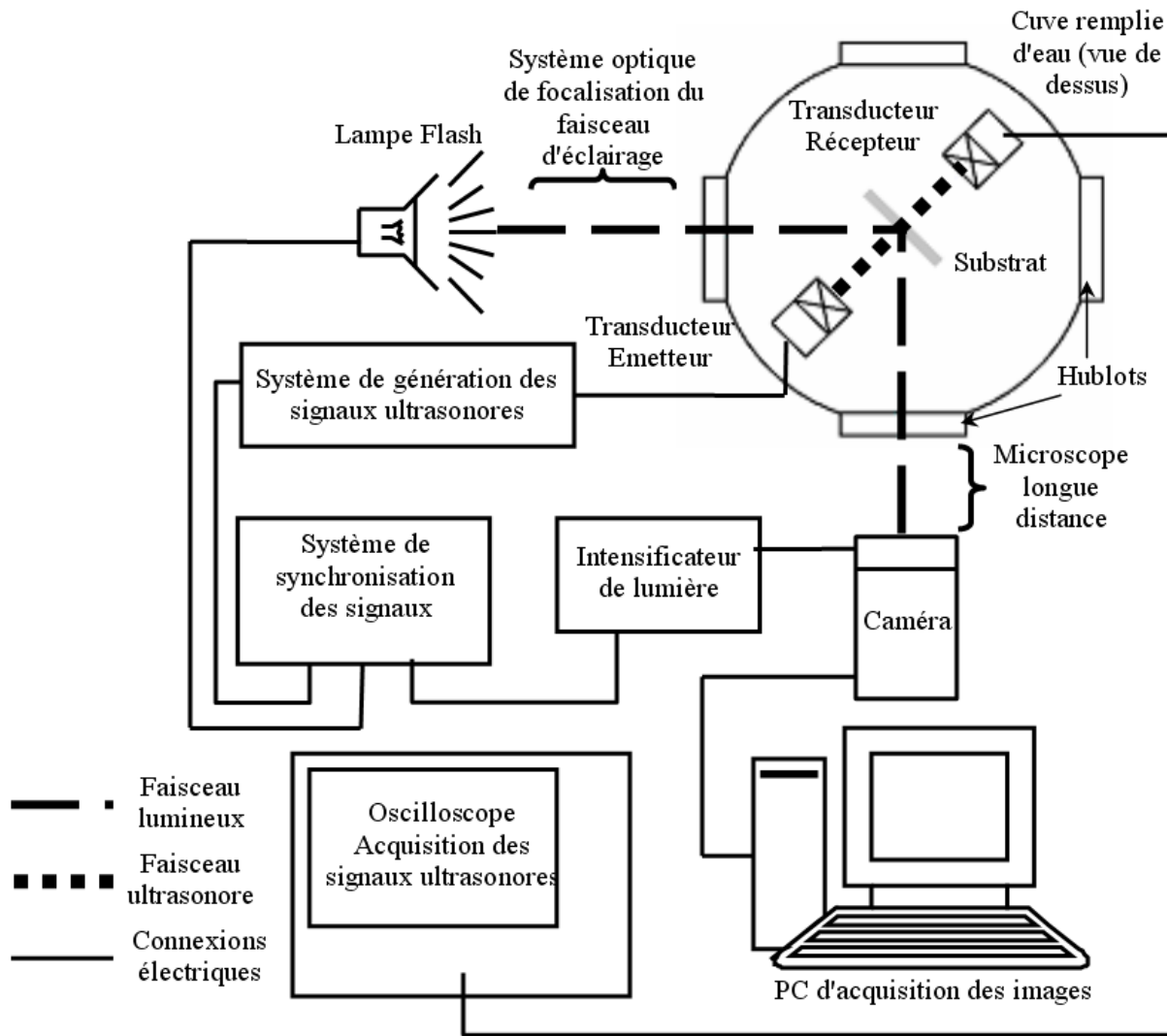


Figure III.12 : Schéma du dispositif expérimental.

De même que pour l'expérience de mouillage du premier chapitre avec les échantillons épais, la demi-largeur des rainures est très inférieure à la longueur capillaire de l'eau. Donc, lorsque la face gravée des échantillons est hydrophobe et qu'une goutte d'eau est déposée dessus, les rainures sous la goutte sont remplies d'air. Par ailleurs, dans cette expérience, l'eau est considérée comme saturée par l'air ambiant. Par conséquent, la relation (II.25) est appliquée. Il est rappelé qu'elle permet de calculer la profondeur maximale  $h_{Lmax}$  à ne pas dépasser pour s'assurer que la ligne de contact reste ancrée à l'embouchure de la crevasse. D'après (II.25), en prenant volontairement une valeur assez faible  $\theta_A = 100^\circ$ ,  $h_{Lmax} = 124$  mm. Comme chaque échantillon sera immergé dans l'eau à une profondeur ne dépassant pas 80 mm, il est raisonnable de penser que le ménisque restera ancré à l'embouchure des rainures.

Les échantillons sont soumis à un champ ultrasonore en incidence normale par l'intermédiaire d'un transducteur émetteur de fréquence centrale 1 MHz. Cette fréquence se situe dans la gamme usuelle des fréquences utilisées pour l'inspection ultrasonore. Le signal ultrasonore transmis à travers l'échantillon est enregistré par un transducteur identique à l'émetteur. Les trains d'ondes imposés font 10 périodes de fréquence centrale 1 MHz, soit une durée du signal d'environ 10  $\mu$ s.

L'expérience consiste à visualiser une petite zone de la surface de l'échantillon. Des photographies et des vidéos sont enregistrées au moyen d'une caméra au travers d'un microscope longue distance pour obtenir un grossissement total, optique et numérique, égal à 386 pour une image obtenue de dimensions 12×9 cm<sup>2</sup>. Le flou de mouvement est minimisé en choisissant un temps d'exposition de 200 ns obtenu grâce à l'utilisation d'une caméra spécifique, d'une lampe flash et d'un intensificateur de lumière. Les figures III.13 et III.14 sont des photographies de l'installation expérimentale montrant respectivement une vue d'ensemble du dispositif et une vue de dessus de l'ensemble optique autour de la cuve.

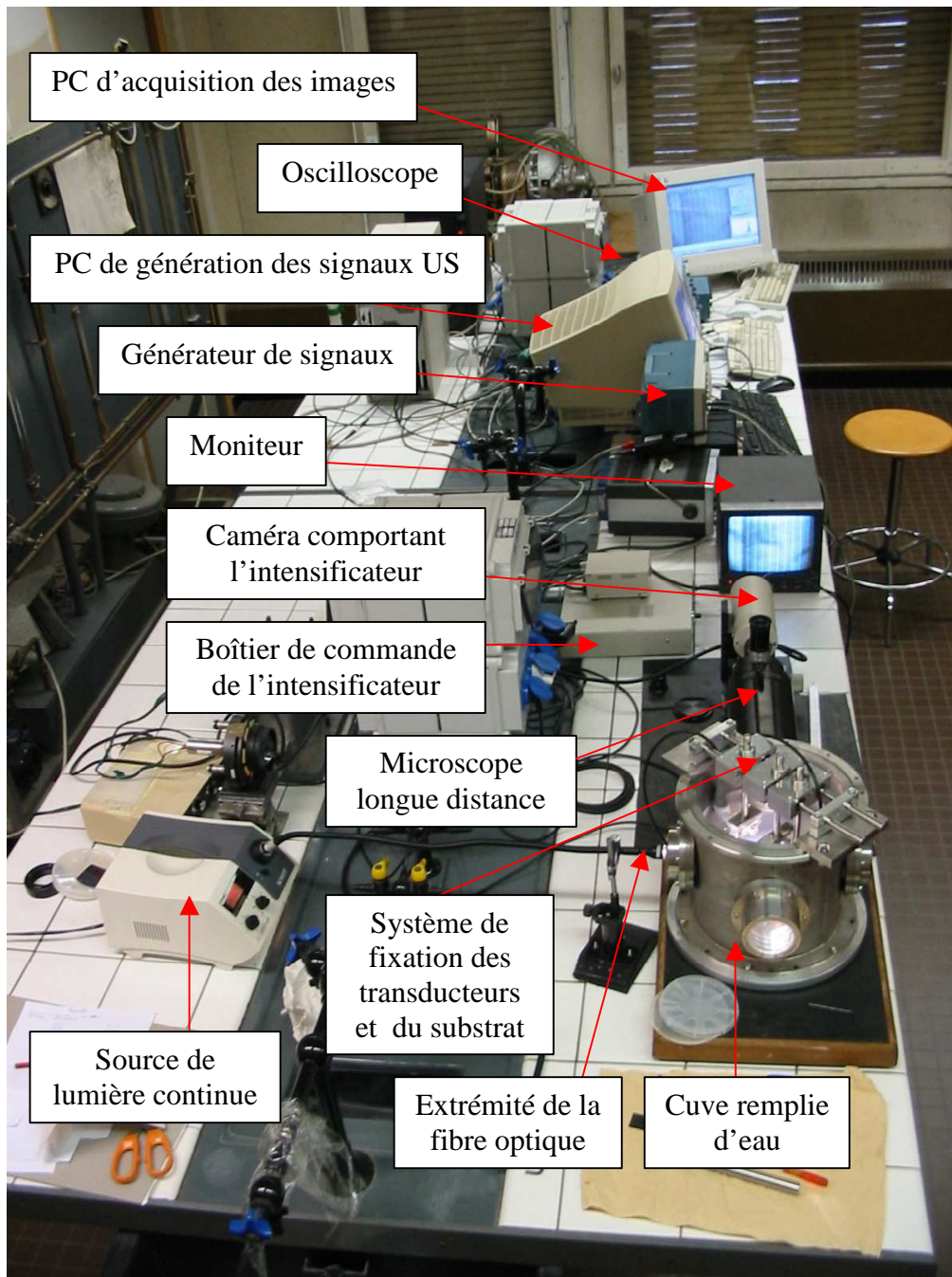


Figure III.13 : Vue d'ensemble du dispositif OMICA (en mode d'éclairage continu).

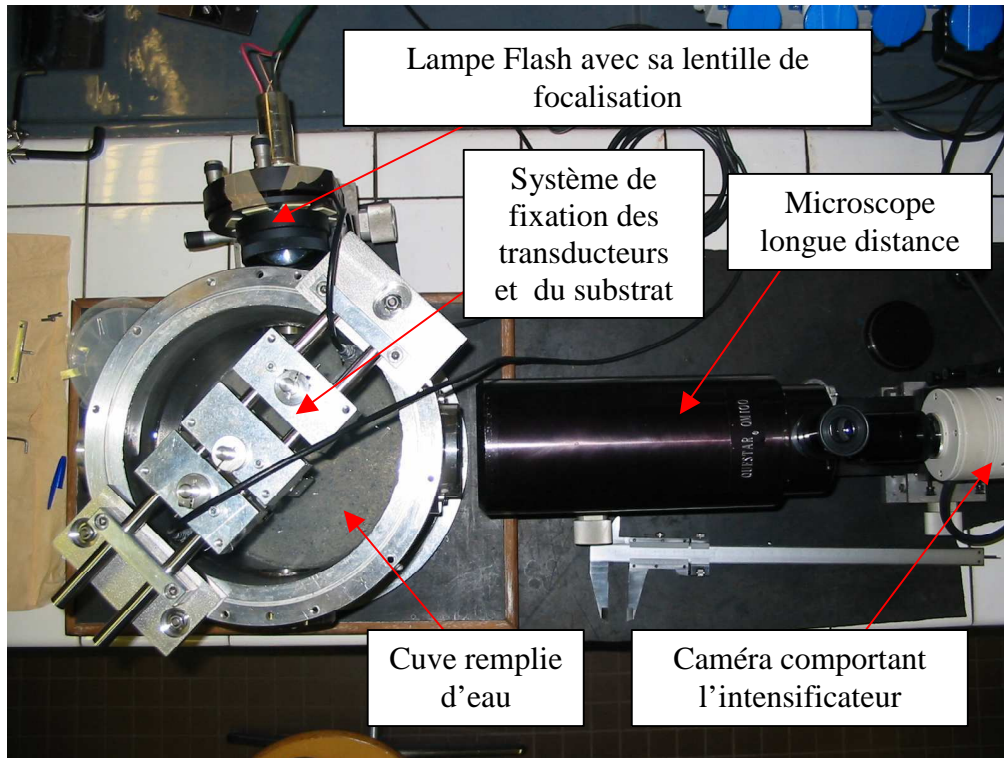


Figure III.14 : Vue de dessus de l'ensemble optique autour de la cuve (en mode d'éclairage avec lampe flash).

### III.5.4. Les images

Sur les images obtenues (Fig. III.15), les rainures remplies d'eau sont sombres sur toute la largeur de la rainure tandis que les rainures remplies de gaz ont un profil de luminosité variable sur la largeur de la rainure : elles sont claires au centre et foncées sur les bords.

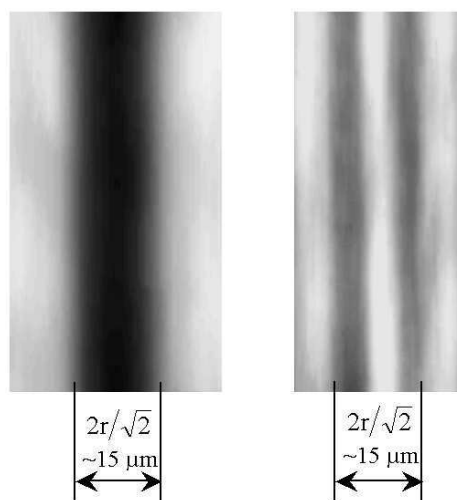


Figure III.15 : Gauche : rainure verticale remplie d'eau. Droite : rainure remplie de gaz.

Une explication qualitative à cette observation est fournie ici. Lorsque la rainure contient du gaz, le ménisque sépare deux milieux d'indice de réfraction différent. Lorsque le faisceau d'éclairage atteint le ménisque, une partie du faisceau est réfracté vers l'intérieur de la rainure et l'autre partie est réfléchi par l'interface. Etant donné l'angle d'incidence du faisceau lumineux, il est très probable que le faisceau réfracté soit "piégé" dans la rainure. Ainsi, seul le faisceau directement réfléchi par l'interface est projeté sur l'objectif de la caméra mais son intensité est inférieure à celle du faisceau incident. Si l'interface est courbée, l'interface agit comme une lentille et fait ainsi converger le faisceau réfléchi. La figure III.16 montre le faisceau incident, d'éclairage, représenté jaune et le faisceau réfléchi en orange.

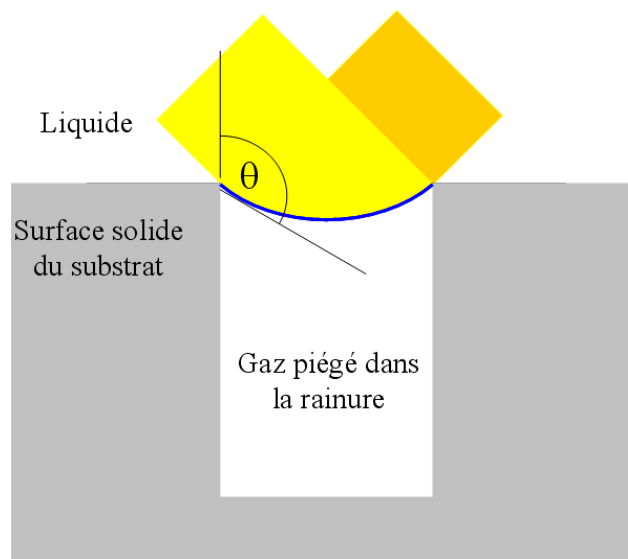


Figure III.16 : Trajet du faisceau lumineux dans une rainure remplie d'air représentée en coupe avec une interface liquide/gaz courbée.

La courbure de l'interface entraîne que le maximum de l'intensité réfléchi par l'interface n'est pas centré sur le profil d'intensité lumineuse de la rainure obtenu par projection. La figure III.17 illustre le décalage du maximum d'intensité lumineuse due à la courbure de l'interface. Ce décalage augmente avec la courbure de l'interface. L'angle de contact  $\theta_0$ , qui peut être estimé à partir de (III.9), n'est que légèrement supérieur à  $90^\circ$ . Par conséquent, la courbure de l'interface n'est pas très grande et le décalage non plus.

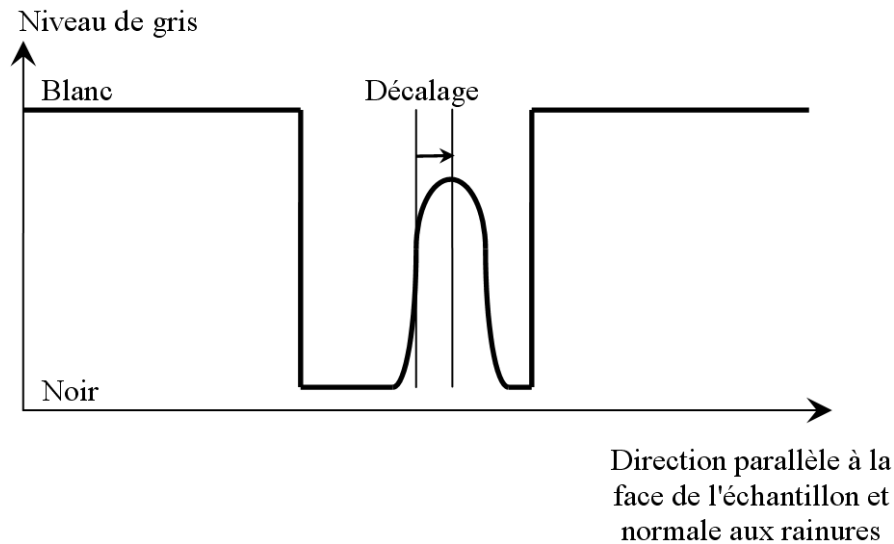


Figure III.17 : Représentation qualitative du profil d'intensité lumineuse d'une rainure correspondant à la situation de l'image de droite de la figure 15.

### III.5.5. Procédure expérimentale

Le but de cette étude est d'examiner l'influence des ultrasons sur les poches de gaz sur une échelle de temps courte : de 1 à 10  $\mu\text{s}$ . Il s'agit de vérifier si, dans ces conditions expérimentales, les ultrasons font croître suffisamment les poches de gaz pour provoquer leur coalescence. Si ce phénomène se produisait, le réglage précis de tous les matériels expérimentaux de synchronisation permettrait de suivre l'expansion des poches de gaz menant à la coalescence. Si la coalescence n'a pas lieu, le dispositif devrait aussi être capable de montrer une dilatation éventuelle des poches de gaz voire même une oscillation des ménisques si celle-ci est significative.

Il s'agit d'observer le mouvement du ménisque des poches de gaz grâce à un balayage temporel de la prise de vue par rapport à l'onde ultrasonore. Pour suivre de manière assez précise l'évolution de la forme des ménisques sur un cycle de surpression/dépression de l'onde ultrasonore, un pas de décalage temporel de 200 ns a été choisi. Bien entendu, sans une caméra ultrarapide, ce balayage ne peut pas s'effectuer sur un seul train d'ondes. C'est pourquoi ce balayage s'effectue sur plusieurs trains d'ondes déclenchés de manière manuelle et donc sans périodicité. Cette façon de procéder repose sur l'hypothèse que le phénomène est parfaitement reproductible d'un train d'ondes à l'autre. Même si les conditions expérimentales des expériences de Bremond *et al.* ne sont pas exactement les mêmes, il est raisonnable de considérer que cette hypothèse qui a été vérifiée par Bremond *et al.* [Bre05b] reste valable pour les conditions expérimentales de cette expérience.

Par ailleurs, le mouvement des ménisques, en réponse à la pression acoustique générée au niveau de l'interface composite, ne s'effectue pas de manière instantanée mais plutôt avec un certain retard [Bre05b]. Ce temps de retard peut être significatif à une fréquence acoustique aussi élevée. C'est pourquoi, lorsque plusieurs prises de vue sont effectuées sur une période de l'onde, cet éventuel retard est pris en compte en faisant un balayage sur une durée supérieure à une période de l'onde ultrasonore.

### III.5.6. Résultat et interprétation

Le changement de courbure du ménisque des poches de gaz provoquée par le passage de l'onde ultrasonore n'est pas perceptible sur les séquences d'images. En effet, les images observées sont identiques à celles qui ont été obtenues sans application du champ ultrasonore. Dans ces conditions expérimentales, il est conclu que les ultrasons ne provoquent ni coalescence, ni croissance significative des poches de gaz.

Il est très probable que l'origine de l'imperceptibilité de tout mouvement du ménisque des poches de gaz soit liée à la pression acoustique générée au niveau des poches de gaz ainsi qu'à la valeur de la fréquence d'excitation vis-à-vis de la fréquence de résonance des poches de gaz. Si la largeur de bande à  $-6\text{dB}$ ,  $0,9 - 1,1\text{ MHz}$ , des trains d'ondes imposés n'englobe pas la fréquence de résonance des poches de gaz alors la dilatation des poches de gaz ne pourra pas être favorisée par le phénomène de résonance.

En outre, si la fréquence de résonance est très nettement inférieure à  $1\text{ MHz}$ , alors le raisonnement du § III.3 ne peut pas être appliqué. En revanche, si la masse de radiation d'une poche dans une rainure était connue, l'expression (III.43) pourrait alors être appliquée pour fournir un ordre de grandeur de l'amplitude du mouvement du ménisque. Si la masse de radiation est importante alors l'amplitude du mouvement du ménisque pourrait être négligeable à ce niveau de fréquence et ce niveau de pression acoustique. Il peut être estimé que la valeur absolue de la pression acoustique est inférieure à  $100\text{ kPa}$ , c'est-à-dire environ 20 fois inférieures au niveau de dépression utilisé par Bremond *et al.* pour provoquer la cavitation.

## III.6. Conclusion

Le modèle de la crevasse a été appliqué à la géométrie particulière des crevasses des échantillons expérimentaux en supposant que la fréquence d'excitation acoustique est

inférieure à la fréquence de résonance. Celui-ci prédit le mouvement du ménisque en fonction de la valeur de la pression acoustique. Le domaine fréquentiel dans lequel se situe l'expérience ultrasonore du chapitre suivant ne correspond pas à ce régime "basse fréquence". L'analyse de ce régime apporte malgré tout des éléments de prédiction. Une vérification expérimentale de cette analyse permettrait de la conforter. Par ailleurs, un approfondissement de l'analyse pourrait permettre de la généraliser à des géométries de crevasse plus complexes se rapprochant des géométries caractéristiques d'une rugosité réelle et pour lesquelles le régime "basse fréquence" serait applicable.

En considérant la poche de gaz dans un trou cylindrique comme un oscillateur masse-ressort non amorti, sa fréquence de résonance a pu être estimée. La raideur de la poche de gaz a été estimée à partir de l'analyse précédente, qui propose une méthode de calcul, et sa masse de radiation a été évaluée en assimilant la poche de gaz à un piston plan. Les valeurs des fréquences de résonance calculées pour les différents trous cylindriques sont toutes sensiblement inférieure à 1 MHz.

L'expérience OMICA a permis d'observer le comportement des poches de gaz contenues dans les rainures des échantillons fins. Dans ces conditions expérimentales, il semble que les ultrasons ne provoquent ni coalescence, ni variation sensible du volume des poches de gaz pouvant mener à une variation de la fraction surfacique de gaz à l'interface. Il est en effet très probable que la pression acoustique générée soit insuffisante et que la valeur de la fréquence d'excitation soit nettement supérieure à la fréquence de résonance des poches de gaz. Il serait intéressant de faire une expérience complémentaire pour vérifier la théorie du § III.3, c'est-à-dire refaire cette expérience en imposant des fréquences d'excitation acoustique beaucoup plus faible. Par ailleurs, en s'inspirant des expériences de Bremond *et al.*, l'imposition d'ultrasons de forte puissance pourraient être essayée pour tenter de montrer qu'un "dégazage acoustique", c'est-à-dire à distance, d'une interface composite est possible.

Les conclusions de ce chapitre permettent d'écarter l'hypothèse de coalescence des poches de gaz ou d'augmentation de la fraction surfacique de gaz pour expliquer la très faible transmission ultrasonore à une interface composite. Le but du chapitre suivant est donc de tenter de fournir une autre interprétation. Il propose notamment une modélisation, différente de celle de Lesueur [Les04], du coefficient de transmission à l'interface composite des échantillons. Il s'agit aussi de le mesurer en fonction d'autres paramètres que la seule fraction surfacique de gaz.



## **Chapitre IV : Transmission des ultrasons à une interface composite**

---

### **IV.1. Introduction**

Les conclusions du chapitre précédent ont permis d'infirmier l'hypothèse d'une augmentation de la fraction surfacique de gaz à l'interface. L'objectif de ce dernier chapitre est donc de fournir une autre explication à la très faible transmission provoquée par l'interface composite.

Les résultats d'expériences précédentes qui sont présentés en début de chapitre montrent la dépendance du coefficient de transmission ultrasonore vis-à-vis de la fraction surfacique de gaz présent à l'interface composite. Il a été choisi de conforter ces résultats mais aussi de les compléter par une évaluation qualitative de l'influence de la fréquence ultrasonore et de la taille des poches de gaz.

Dans ce but, une expérience ultrasonore en immersion dans l'eau est réalisée. Afin de mieux appréhender les résultats de l'expérience, une modélisation dans le domaine de Rayleigh est développée.

Trois modèles originaux différents sont proposés. Le premier est basé sur la définition d'une impédance acoustique effective de la couche interfaciale composite. Cette impédance effective est introduite dans l'expression du coefficient de transmission d'un milieu multicouche. Les second et troisième modèle s'appuient sur le modèle masse-ressort, largement utilisé pour décrire la transmission/réflexion des ultrasons à une interface imparfaite entre deux solides. Le second modèle utilise comme raideur du ressort la raideur de la couche interfaciale effective. La raideur du troisième modèle, quant à elle, est celle d'un ressort effectif équivalent à deux ressorts : celui de la fraction surfacique du solide et celui de la fraction surfacique du gaz. Les paramètres du premier et du second modèle sont la fréquence des ultrasons, la fraction surfacique de gaz et l'épaisseur de la couche interfaciale composite. Le troisième dispose d'un paramètre supplémentaire : le diamètre des poches de gaz.

Après avoir présenté les résultats des expériences précédentes, la nouvelle expérience ultrasonore est décrite. Une brève bibliographie sur la transmission des ultrasons aux interfaces en incidence normale est ensuite reportée. Dans la partie suivante, consacrée à la modélisation, les différents domaines de diffusion sont introduits avant de définir les trois modèles. Les résultats des trois modèles sont alors comparés à ceux de l'expérience. Il est remarqué que le troisième modèle donne des résultats prometteurs. Des perspectives sont suggérées en fin de chapitre pour permettre de l'améliorer.

## IV.2. Mesure de la transmission ultrasonore à une interface composite contrôlée

### IV.2.1. Fonction de transfert de l'interface :

Dans cette étude, le principe de mesure par comparaison est utilisé. Il consiste à comparer la transmission à travers une interface composite (échantillon gravé hydrophobe) et celle à travers une interface complètement solide-liquide (échantillon de référence). Le but est d'éliminer toutes les causes de variation des signaux transmis, intervenant dans la chaîne de mesure (cf. annexe 3), induites par autre chose que l'interface étudiée.

Cette comparaison peut être caractérisée par la Fonction de Transfert de l'Interface en mode transmission,  $FTI\_t$ , définie comme suit :

$$FTI\_t(f) = \frac{\left| (A^T)_{gh}(f) \right|}{\left| (A^T)_l(f) \right|} = \frac{\left| t^{gh}(f) \right|}{\left| t^l(f) \right|} \quad (IV.1)$$

avec  $\left| A^T(f) \right|$  le module de la transformée de Fourier du signal ultrasonore à la fréquence  $f$  transmis à travers l'échantillon considéré, et  $\left| t(f) \right|$  le module du coefficient de transmission à la fréquence  $f$  de l'interface considérée. L'indice et l'exposant  $gh$  font respectivement référence à l'échantillon et à l'interface gravés hydrophobes étudiés, et l'indice et l'exposant  $l$  font respectivement référence à l'échantillon de référence et à l'interface lisse. Le signal temporel n'étant pas monochromatique, il est plus intéressant de réaliser une spectroscopie ultrasonore, c'est-à-dire d'utiliser la transformée de Fourier du signal pour les analyses.

Ainsi, pour une interface dont la valeur de la  $FTI\_t$  est proche de 1, le couplage acoustique pourra être considéré comme très bon. Il sera considéré comme très mauvais si la  $FTI\_t$  est proche de 0. Ce paramètre sera utilisé aussi pour la modélisation afin de pouvoir comparer les résultats numériques à ceux de l'expérience.

### IV.2.2. Expériences ultrasonores précédentes

Les expériences ultrasonores de Lesueur ont été réalisées dans l'eau (dispositif en immersion) mais aussi dans un alliage métallique liquide, le plomb-bismuth (dispositif LIQUIDUS). Des échantillons fins à trous et à plots (plus de détail sur les échantillons dans [Les04]) et à rainures [Moy05] ont été utilisés. L'expérience ultrasonore OMICA (cf. § III.5) utilise les mêmes échantillons à rainures. La comparaison des résultats de ces trois expériences, utilisant toutes les trois des traducteurs de fréquence centrale 1 MHz, permet de vérifier que les résultats obtenus ne dépendent pas des quelques différences de conditions expérimentales énumérées dans le tableau IV.1. Les principales conclusions issues de ces expériences sont reportées dans les paragraphes suivants.

	Dispositif en immersion [Les04, Moy05]	Dispositif LIQUIDUS [Les04, Moy05]	Dispositif OMICA
Traducteurs	Panametrics v302 et HBS HCC1/25	Panametrics v192	Panametrics v303
Type de traducteurs	immersion	au contact (utilisation de guides d'ondes : 40 mm de diamètre, 300 mm de longueur)	immersion
Diamètre des traducteurs	25,4 mm	38,1 mm	12,7 mm
fréquence centrale des traducteurs en MHz	1	1	1
bande passante à – 6 dB en MHz	0,63 - 1,27	0,56 - 1,42	0,7 - 1,28
Echantillons	fins à trous, à plots, et à rainures	fins à trous, à plots, et à rainures	fins à rainures
Liquide	eau ordinaire à 20°C	Pb-Bi à 180°C	eau déminéralisée à 18°C
Distance diaphragme traducteurs - échantillons	190 mm (champ lointain)	50 mm (champ lointain)	émetteur : 35 mm récepteur : 20 mm (limite champ proche et lointain)
Générateurs de signaux	Sofranel 5055PR	EXPERT SEPEMA	Sofranel 5055PR
Oscilloscope	LeCroy 9410	LeCroy 9310 C	LeCroy WaveSurfer 424

Tableau IV.1 : Conditions expérimentales des expériences réalisées dans les trois dispositifs : dispositif en immersion, dispositif LIQUIDUS, et OMICA.

#### IV.2.2.1. Surfaces rugueuses mouillées

Dans une première partie, les résultats obtenus avec les échantillons mouillés sont reportés. Dans ce cas l'interface est non composite. Il s'agit d'étudier l'influence de la rugosité seule sur la transmission des ultrasons à l'interface.

Ces mesures ont été réalisées par Lesueur avec les échantillons fins à trous, à plots et à rainures et dans OMICA avec quelques échantillons à rainures. Elles n'ont été faites que dans l'eau, grâce à l'utilisation d'échantillons non traités chimiquement, c'est-à-dire non hydrophobes. En effet, il n'a pas été possible d'obtenir un système mouillant silicium – Pb-Bi dans les conditions expérimentales de LIQUIDUS.

Pour les deux dispositifs (Dispositif en immersion de Lesueur et OMICA), les résultats obtenus montrent que la  $FTI_t$  (cf. § IV.2.1) est très légèrement plus élevée que 1 sur toute la largeur de bande à  $-6\text{dB}$  des traducteurs de fréquence 1 MHz utilisés. L'énergie transmise à travers une surface rugueuse non composite est donc du même ordre que celle transmise à travers une surface lisse.

Les dimensions des rainures étant très inférieures à la longueur d'onde, la diffusion de l'onde par la rugosité est donc négligeable. Cet effet qui aurait tendance à rendre la  $FTI_t$  inférieure à 1 s'oppose à un autre effet supposé par Lesueur : la présence de la rugosité gravée diminue l'épaisseur moyenne des échantillons ce qui améliore la proportion d'énergie transmise. Les valeurs de la  $FTI_t$  étant malgré tout très proches de 1, l'influence de la rugosité seule sur la transmission des ultrasons dans ce régime basse fréquence est considérée comme négligeable.

#### IV.2.2.2. Interfaces composites

Dans cette partie, les échantillons ont tous été traités de façon à être hydrophobes. Dans ce cas, lors de l'immersion d'un échantillon gravé, l'eau ne peut pas pénétrer dans les crevasses, que ce soient des rainures, des trous ou des espaces entre plots. En effet, entre les crevasses, l'interface est purement solide-liquide, mais au niveau des rainures l'eau est séparée du silicium par une poche de gaz. Les interfaces sont alors composites. Pour les échantillons à trous et à plots, la taille des diffuseurs  $d$  vis-à-vis de la fréquence ultrasonore est telle que  $\lambda/d \approx 260$ . Cela signifie que le domaine de diffusion concerné est celui de Rayleigh.

Il a été constaté, avec les expériences en eau, que l'amplitude du signal transmis à travers l'échantillon de référence est la même que l'échantillon soit hydrophobe ou non. Pour le calcul de la  $FTI_t$ , ce résultat permet de comparer les signaux transmis à travers les échantillons gravés, au choix par rapport à l'échantillon de référence hydrophobe ou par rapport à l'échantillon de référence non traité.

De plus, en Pb-Bi, le signal transmis à travers l'échantillon de référence est de très bonne qualité. Ce résultat est surtout intéressant car il permet de penser qu'un bon couplage acoustique peut être obtenu avec un système non mouillant.

Il permet également de confirmer, en faisant aussi référence aux résultats précédents obtenus avec des surfaces rugueuses mouillées, que ce sont bien (du moins dans le cas des échantillons en silicium) les poches de gaz de l'interface composite qui sont à l'origine du mauvais couplage acoustique et non pas la rugosité seule ou tout autre phénomène physico-chimique inconnu. Ainsi, le diaphragme du TUSHT pourrait ne pas être mouillé par le sodium et pourtant un bon couplage acoustique serait obtenu si la surface du diaphragme est très lisse.

Concernant les résultats obtenus avec les échantillons gravés, Lesueur a tracé l'évolution de la  $FTI_t$  à 1 MHz en fonction de la fraction surfacique d'interface purement solide-liquide  $\tau$  pour les échantillons à trous et à plots (Fig. IV.1) et pour les échantillons à rainures (Fig. IV.2) obtenus avec le dispositif en immersion et LIQUIDUS. La courbe obtenue avec OMICA est tracée à la figure IV.3.

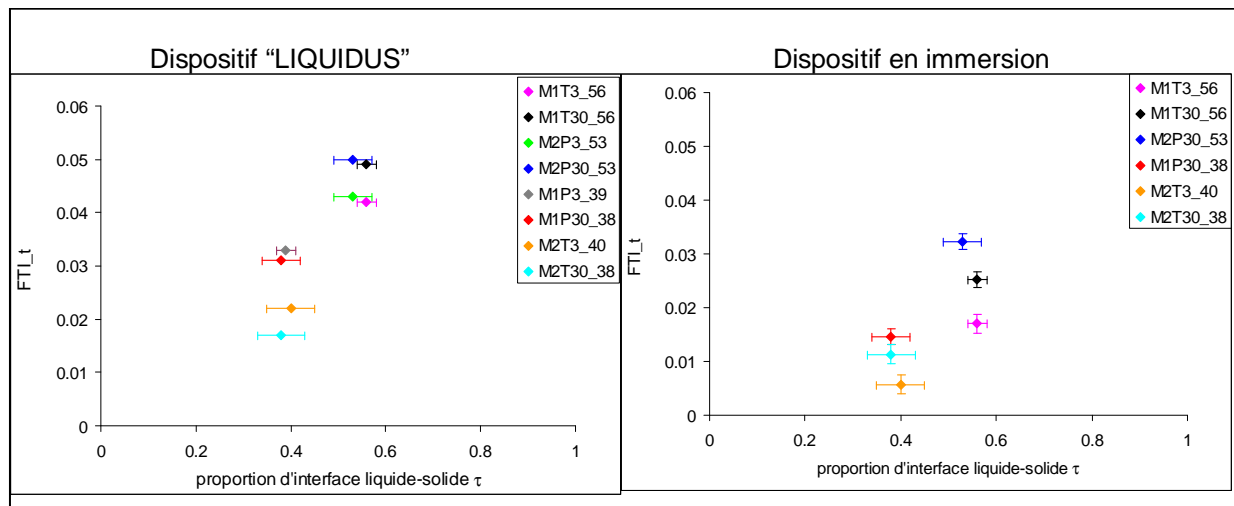


Figure IV.1 :  $FTI_t$  à 1MHz  $t$  en fonction de  $\tau$  à 1 MHz obtenue avec les échantillons à trous et à plots pour les deux dispositifs : en immersion (en eau) et LIQUIDUS (Pb-Bi) [Les04].

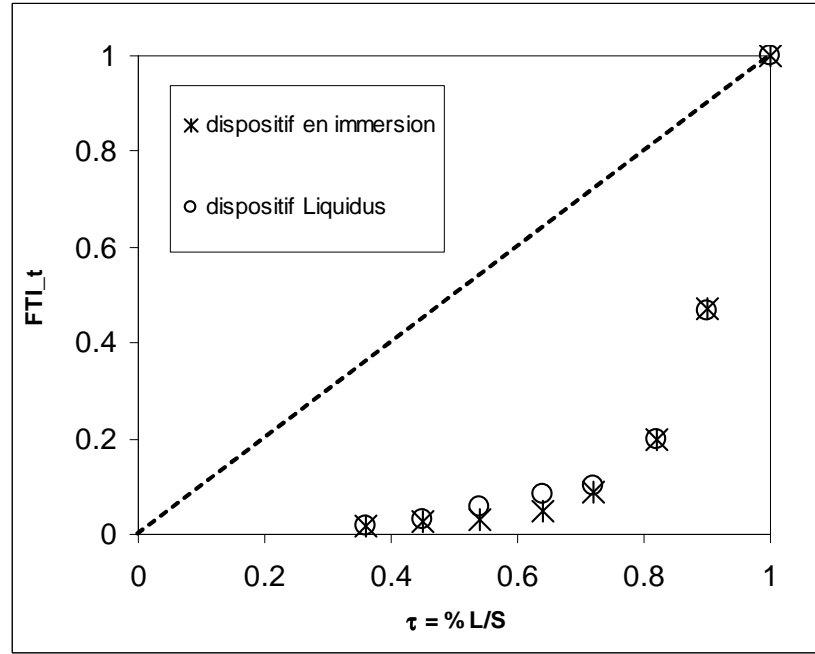


Figure IV.2 : Evolution de la  $FTI_t$  en fonction de  $\tau$  à 1 MHz obtenue avec les échantillons à rainures pour les deux dispositifs : en immersion (en eau) et LIQUIDUS (Pb-Bi) [Moy05].

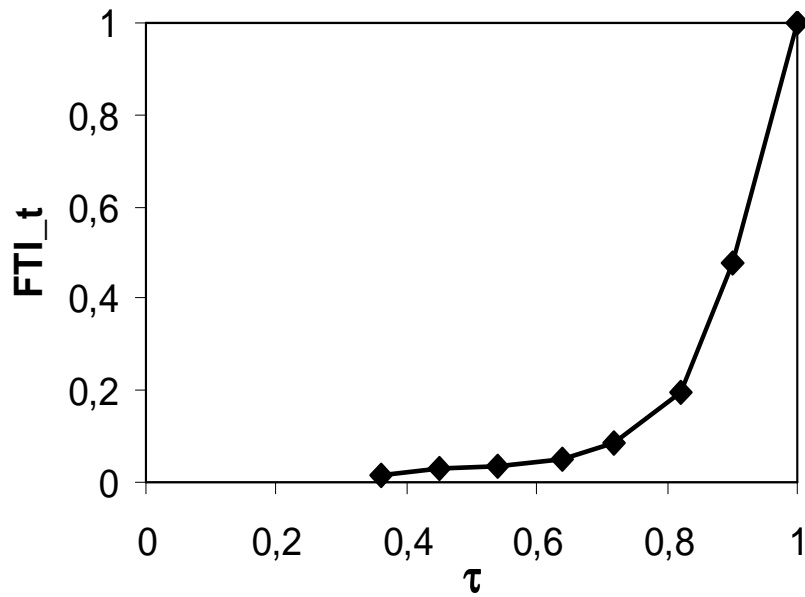


Figure IV.3 : Evolution de la  $FTI_t$  en fonction de  $\tau$  à 1 MHz obtenue avec les échantillons à rainures dans l'expérience OMICA.

D'après la figure IV.1, les valeurs de la  $FTI_t$  obtenues avec les deux dispositifs sont proches et elles sont très faibles. Les figures IV.2 et IV.3 montrent aussi que les valeurs de la  $FTI_t$  obtenues avec les trois dispositifs sont très proches. Ces trois courbes indiquent clairement que la  $FTI_t$  augmente très doucement avec  $\tau$  jusqu'à 0,7 environ puis augmente brutalement jusqu'à l'unité. Le principal phénomène observé est donc la chute brutale de la

$FTI_t$  dès qu'un peu de gaz est présent à l'interface. Pour des valeurs de  $\tau$  inférieures à 0,7 l'énergie transmise à travers l'interface est pratiquement négligeable.

Ces résultats montrent que les différences de conditions expérimentales entre les dispositifs ont une faible influence. Par exemple, il semble que la différence de pression acoustique absolue générée par les différents traducteurs ait une influence négligeable sur les valeurs de  $FTI_t$  mesurées. Lesueur *et al.* [Les04, Moy05] ont donc vérifié l'équivalence du point de vue acoustique entre l'interface composite obtenue avec un système Pb-Bi – silicium et celle obtenue avec le système eau – silicium hydrophobe. Le silicium réagissant chimiquement avec le sodium, il n'est pas possible de vérifier expérimentalement cette équivalence pour le système sodium liquide – silicium. Cependant, il semble que l'influence du gaz de l'interface composite soit largement prépondérante par rapport à toute autre propriété physique du solide et du liquide (comme l'impédance acoustique caractéristique par exemple) qui pourrait être impliquée. Par ailleurs, il est rappelé que la faible proportion d'énergie transmise ne peut pas être attribuée à la rugosité seule des échantillons.

Si la longueur d'onde de l'onde ultrasonore est beaucoup plus petite que la taille des diffuseurs (poches de gaz) alors l'amplitude du signal transmis devrait être proportionnelle à l'aire réelle de contact purement solide-liquide comme le prévoit le modèle surfacique de Lesueur [Les04] qui correspond sur la figure IV.2 à la droite  $FTI_t = \tau$ . Ce n'est pas le cas des conditions expérimentales de cette étude comme en témoigne les résultats des figures IV.2 et IV.3. En effet, la diminution de la  $FTI_t$  est beaucoup plus importante que la simple diminution provoquée par la surface réfléchissante que constituent les poches de gaz. Au travers de la modélisation et de l'expérience qui vont être présentées, il sera montré que les propriétés effectives de l'interface composite pourraient expliquer la chute de l'évolution de la  $FTI_t$  en fonction de  $\tau$ .

### **IV.2.3. Expérience en eau avec des échantillons épais**

Après avoir introduit tout d'abord les objectifs et le principe des essais, les différents paramètres étudiés sont énumérés. Le dispositif et la méthode expérimentale sont ensuite décrits. La méthode d'acquisition et de traitement des signaux ultrasonores est alors précisée. Enfin, les résultats de l'expérience sont présentés et interprétés.

#### **IV.2.3.1. Objectifs et principe**

Les résultats des expériences précédentes ont montré la dépendance du coefficient de transmission ultrasonore à l'interface vis-à-vis de sa fraction surfacique de gaz. Cette nouvelle

expérience ultrasonore en eau est menée afin de conforter ces résultats mais aussi d'évaluer qualitativement l'influence de la taille des poches de gaz et celle de la fréquence ultrasonore.

L'expérience, basée sur une méthode de mesure en immersion, consiste à mesurer plusieurs signaux transmis au travers des différents échantillons puis à les utiliser pour calculer les  $FTI_t$  des interfaces pour les deux sens de propagation.

Les méthodes en immersion sont les méthodes les plus fréquemment utilisées pour leur meilleure précision et leur bonne reproductibilité par rapport aux méthodes de contact, ainsi que pour leur relative simplicité de mise en œuvre. Les mesures en immersion s'effectuent dans une cuve remplie d'un liquide couplant et dans laquelle on dispose le (ou les) traducteur(s) ainsi que l'échantillon à caractériser. Le couplant est généralement l'eau, dont l'atténuation est très faible ( $1,1 \cdot 10^{-3}$  dB/mm à 2,25 MHz) et la plupart du temps négligeable.

Les échantillons utilisés sont les échantillons épais comportant des trous cylindriques (cf. § I.4.1.2). Il est rappelé que les échantillons sont au nombre de 14. Parmi eux, un seul échantillon n'est pas gravé et il est désigné comme étant l'échantillon de référence. Avant l'expérience, les échantillons ont été traités de façon à les rendre hydrophobes. Ainsi, lorsque les échantillons sont immergés dans l'eau, les trous cylindriques sont remplis de gaz : principalement de l'air et un peu de vapeur d'eau.

#### IV.2.3.2. Épaisseur des échantillons

L'épaisseur de 10 mm choisie correspond à la valeur maximale pour laquelle les procédés de lithographie optique et gravure RIE sont réalisables. L'épaisseur standard d'environ 0,5 mm a été évitée pour cette étude car elle interdit la possibilité d'isoler temporellement les signaux correspondant aux échos ultrasonores successifs dans l'échantillon et rend difficilement interprétable les signaux ultrasonores acquis puisqu'ils correspondent à la somme des contributions de tous ces échos successifs.

Pour pouvoir distinguer temporellement les échos transmis ou réfléchis directement par l'échantillon de ceux, transmis ou réfléchis, ayant effectué un ou plusieurs allers-retours (et donc éviter un recouvrement de ces échos), la durée de l'écho doit être inférieure à  $2L/c_s$  où  $L$  est l'épaisseur de l'échantillon et  $c_s$  la vitesse du son dans la direction de l'épaisseur. Plus l'échantillon est épais, plus la durée maximale est grande. C'est pourquoi, la valeur maximale de 10 mm a été choisie. Les signaux d'excitation imposés sont des impulsions de façon à obtenir une durée de l'écho la plus courte possible.



#### IV.2.3.3. Les paramètres

Les paramètres influant sur le coefficient de transmission sont de deux types. Les premiers sont liés aux caractéristiques des échantillons, les seconds sont liés à l'excitation ultrasonore.

Les paramètres liés aux échantillons caractérisent en fait la rugosité de la face gravée des échantillons. Cette rugosité contrôlée doit se rapprocher le plus possible du cas réel d'une rugosité obtenue par un usinage mécanique. Trois paramètres caractérisent cette rugosité contrôlée : le diamètre et la profondeur des trous cylindriques et la fraction surfacique des trous cylindriques  $\phi_T$ .

##### IV.2.3.3.1. Diamètre et profondeur des trous cylindriques

Les trous cylindriques ont tous le même diamètre et la même profondeur pour un échantillon donné mais peuvent avoir trois diamètres différents : 10, 20 et 30  $\mu\text{m}$  environ et deux profondeurs différentes : 10 et 30  $\mu\text{m}$  selon les échantillons.

Les trois valeurs de diamètres ont été choisies de telle façon qu'elles respectent deux critères. Le premier correspond aux limites du procédé de gravure des trous cylindriques. Il s'agit de la limite inférieure de 10  $\mu\text{m}$ . En-deçà de cette valeur, la circularité des trous n'est plus du tout garantie par l'appareil capable de réaliser la lithographie optique et la gravure RIE sur des échantillons épais. Le deuxième critère fournit une limite supérieure de 30  $\mu\text{m}$  qui correspond à la valeur maximale du diamètre (avec un coefficient de sécurité) qui puisse garantir la stabilité de la poche de gaz, lorsque la surface est hydrophobe, vis-à-vis de la pression hydrostatique imposée par le dispositif expérimental.

Concernant les deux valeurs de profondeur des trous, à nouveau, deux critères limitent cette dimension. La profondeur doit être plus grande que la flèche de la courbure de l'interface liquide-gaz afin que l'interface ne touche pas le fond du trou. La limite inférieure de 10  $\mu\text{m}$  est donc largement suffisante. D'autre part, comme il a été évoqué précédemment, pour ne pas trop s'éloigner du cas réel d'une rugosité obtenue par un usinage mécanique, la profondeur ne doit pas être trop grande et doit se situer dans un ordre de grandeur proche de celui du diamètre des trous. La limite supérieure de 30  $\mu\text{m}$  est donc apparue comme étant largement suffisante pour se distinguer de la première valeur de 10  $\mu\text{m}$ .

Il s'agit ainsi, en faisant varier le diamètre et la profondeur des diffuseurs, de faire varier la fréquence de résonance des poches de gaz. Les fréquences de résonance des poches de gaz (cf. tableau III.1) sont estimées inférieures mais tout de même relativement proches des

fréquences d'excitation générées dans l'expérience (cf. tableau IV.1). Par conséquent, il est possible que la fréquence de résonance des poches de gaz influe sur la diffusion des ultrasons.

#### IV.2.3.3.2. Fraction surfacique de trous cylindriques

La fraction surfacique de trous cylindriques  $\phi_T$  représente le rapport entre l'aire de la surface constituée par les disques des trous cylindriques et l'aire apparente de la surface totale de l'échantillon. Le complémentaire à 1 de  $\phi_T$  est noté  $\tau$ .  $\tau$  correspond donc au rapport entre l'aire de la surface constituée par l'espace entre les trous cylindriques et l'aire apparente de la surface. Lorsque l'échantillon est immergé dans l'eau,  $\phi_T$  correspond à la fraction surfacique de gaz  $\phi_G = 1 - \tau$  de l'interface composite et  $\tau$  à la fraction surfacique d'interface purement solide-liquide. Par exemple, pour la surface de l'échantillon de référence, qui ne comporte aucun trou,  $\phi_G = 0$  et  $\tau = 1$ . Les valeurs possibles de  $\tau$  avec les divers échantillons sont : 0,5; 0,7; 0,8; 0,9; 1. La valeur la plus faible  $\tau = 0,5$  a été imposée par le procédé de gravure RIE qui ne permet pas d'obtenir des valeurs inférieures.

#### IV.2.3.3.3. Fréquence des ultrasons

Il s'agit de mesurer le coefficient de transmission des interfaces composites des échantillons sur trois gammes de fréquence correspondant chacune à la largeur de bande exploitable des trois couples de transducteurs utilisés. Les transducteurs de chaque couple ont la même fréquence centrale et sont tous plans (non focalisés).

Les caractéristiques des transducteurs utilisés et de leurs faisceaux ultrasonores sont indiquées dans le tableau IV.2. La séparation champ proche-champ lointain se trouve à la distance  $I_0$  du diaphragme du transducteur telle que :  $I_0 = D^2/(4\lambda)$  avec  $D$  le diamètre du diaphragme du transducteur et  $\lambda$  la longueur d'onde de l'onde ultrasonore dans l'eau.

Pour limiter le nombre de mesures, tous les échantillons ne seront pas utilisés avec chacun des couples de transducteurs. Le couple de transducteur 5 MHz sera utilisé avec tous les échantillons. Le couple 2,25 MHz sera utilisé seulement avec les échantillons dont la valeur de  $\tau$  avoisine 0,8 (ce qui inclut l'échantillon dont la profondeur des trous n'est que de 10  $\mu\text{m}$ ). Le couple 1 MHz sera utilisé, quant à lui, seulement avec les échantillons dont la valeur de  $\tau$  avoisine 0,8 (ce qui inclut l'échantillon dont la profondeur des trous n'est que de 10  $\mu\text{m}$ ) et avec les échantillons comportant des trous cylindriques de diamètre avoisinant 30  $\mu\text{m}$ .

fréquence centrale des traducteurs en MHz	1	2,25	2,25	5
Désignation	V303	V304	A397S	V309
Diamètre $D$ en mm	12,7	25,4	28,58	12,7
Bande passante étudiée en MHz	-	1,5 – 3,5		3 – 6,5
$I_0$ en mm	27,2	245,2	310,3	136,2

Tableau IV.2 : Caractéristiques des traducteurs utilisés et de leur faisceau ultrasonore. Contrairement aux fréquences centrales 1 et 5 MHz, pour la fréquence centrale 2,25 MHz, les traducteurs de ce couple ne sont pas identiques.

Les fréquences imposées par les capteurs sont toutes supérieures aux fréquences de résonance  $f_{PG}$  des poches de gaz évaluées au chapitre III (cf. tableau III.1). En utilisant la relation (III.43) où sont introduites les expressions III.49 et III.52, il est possible d'évaluer l'amplitude  $U_{PG}$  de déplacement du ménisque. Parmi les différents rayons de trous cylindriques et les différentes fréquences centrales des capteurs utilisés, le cas le plus critique, c'est-à-dire celui où le mouvement du ménisque est le plus sensible à la pression acoustique, est celui pour lequel  $r = 5 \mu\text{m}$  et  $f = 1 \text{ MHz}$ . Dans ce cas, la valeur de  $U_{PG}$  correspondante ne dépasse pas  $1 \mu\text{m}$  tant que  $P_A$  reste inférieure à 140 kPa. Si  $r = 15 \mu\text{m}$ ,  $U_{PG} = 1 \mu\text{m}$  pour  $P_A \approx 0,5 \text{ MPa}$ . Ainsi, si la relation (III.43) décrit assez bien la réalité, il peut être considéré que dans toute l'expérience, la fraction surfacique de gaz des interfaces composites ne varie pas sous l'action des ultrasons.

#### IV.2.3.3.4. Amplitude de la pression acoustique

En mode génération d'impulsions, il est possible de choisir parmi quatre niveaux l'énergie de l'impulsion émise, le niveau 4 étant le niveau d'énergie le plus élevé et le niveau 1 étant le plus faible. L'amplitude de pression du champ acoustique généré par le traducteur est une fonction croissante du niveau d'énergie. Il s'agit avec ce paramètre d'évaluer l'influence de l'amplitude de pression acoustique  $P_A$  sur le coefficient de transmission relié au comportement des poches de gaz et donc d'évaluer l'importance des phénomènes non-linéaires engendrés par l'interface composite. Seuls les niveaux d'énergie 2, 3 et 4 sont utilisés car le niveau d'énergie 1 ne permet pas d'enregistrer des signaux (transmis au travers des interfaces composites) de qualité.

#### IV.2.3.3.5. Les paramètres $d/\lambda$ et $ka$

Le paramètre  $d/\lambda$  est lié à la fois au diamètre des trous cylindriques  $d$  de l'échantillon et à la fréquence  $f$  des ultrasons puisque  $c = \lambda f$  avec  $c$  et  $\lambda$ , respectivement la vitesse du son et la longueur d'onde dans l'échantillon ou dans l'eau. Il n'est pas évident de savoir quelle longueur d'onde, celle dans le silicium  $\lambda_{Si}$  ou celle dans l'eau  $\lambda_{eau}$ , est la plus représentative pour pouvoir juger du domaine de diffusion concerné. Dans tous les cas, comme le montre le tableau IV.3, pour la gamme de diamètres de diffuseurs et de fréquences ultrasonores étudiés, les paramètres  $d/\lambda$  obtenus se situent toujours dans le domaine de Rayleigh. Il est observé cependant, que pour le diamètre le plus grand (30  $\mu\text{m}$ ) et pour les fréquences les plus élevées (supérieures à 5 MHz), le rapport  $d/\lambda$ , calculé à partir de la longueur d'onde dans l'eau, se rapproche du domaine stochastique. Il est donc possible que, pour ces valeurs de paramètres, la diffusion des ultrasons par les diffuseurs devienne significative. Il s'agit d'étudier l'influence du rapport  $d/\lambda$  sur le coefficient de transmission et donc, par voie de conséquence, l'évolution des courbes  $FTI_t(\tau)$  en fonction du rapport  $d/\lambda$ . Un autre paramètre, lui aussi représentatif de la diffusion ultrasonore est utilisé par les acousticiens ; il s'agit du paramètre  $ka$ , où  $k$  est le nombre d'onde et  $a$  est le rayon du diffuseur (correspond ici à  $r$ ). Il est tout-à-fait équivalent puisqu'il est égal  $\pi d/\lambda$ .

$d$ en $\mu\text{m}$	$d/\lambda_{eau}$ à 1 MHz	$d/\lambda_{eau}$ à 2,25 MHz	$d/\lambda_{eau}$ à 5 MHz
10	0,007	0,015	0,034
20	0,014	0,030	0,068
30	0,020	0,046	0,101
$d$ en $\mu\text{m}$	$d/\lambda_{Si}$ à 1 MHz	$d/\lambda_{Si}$ à 2,25 MHz	$d/\lambda_{Si}$ à 5 MHz
10	0,001	0,003	0,006
20	0,002	0,005	0,012
30	0,004	0,008	0,018

Tableau IV.3 : Valeurs des paramètres  $d/\lambda$  pour les trois diamètres de trous cylindriques et pour différentes fréquences d'excitation.

#### IV.2.3.4. Description du dispositif expérimental

L'expérience est réalisée au LCND à l'aide du dispositif en immersion illustré à la figure IV.4. Les transducteurs et l'échantillon utilisés sont immergés dans la cuve remplie d'eau à température ambiante (20°C). Ils sont positionnés et orientés les uns par rapport aux autres grâce à deux systèmes mécaniques indépendants présentant plusieurs degrés de liberté. Le premier système permet de régler la position et l'orientation des deux transducteurs l'un par

rapport à l'autre et le second permet de régler la perpendicularité des faces de l'échantillon par rapport à l'axe du faisceau ultrasonore (incidence normale).

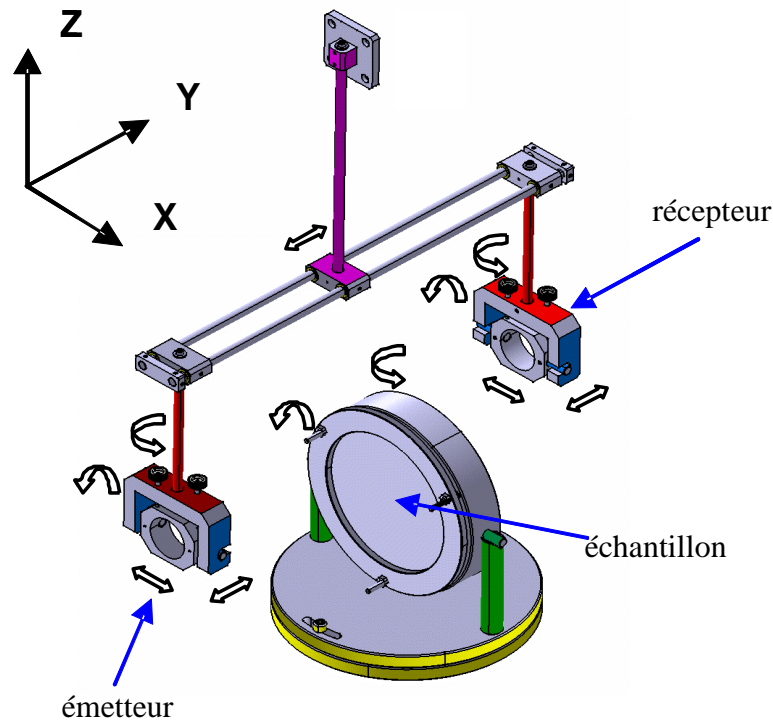


Figure IV.4 : Schéma des deux systèmes mécaniques avec leurs degrés de liberté (d'après [Cha03]).

Les signaux ultrasonores générés sont des impulsions. La chaîne de génération et d'acquisition des impulsions permet d'utiliser indifféremment l'un ou l'autre des transducteurs comme émetteur et/ou récepteur. Comme le montre la figure IV.5, les impulsions à émettre par le transducteur ou à enregistrer avec l'oscilloscope sont gérées par deux générateurs/récepteurs d'impulsions reliés chacun à un transducteur d'un côté et à l'oscilloscope de l'autre. Les échos transmis au travers de l'échantillon peuvent être émis et reçus dans un sens ou dans l'autre. Le dispositif expérimental comporte deux chaînes séparées de génération et d'acquisition des signaux afin d'étudier l'effet du sens de propagation des ultrasons vis-à-vis de la face gravée des échantillons sans modifier le dispositif expérimental.

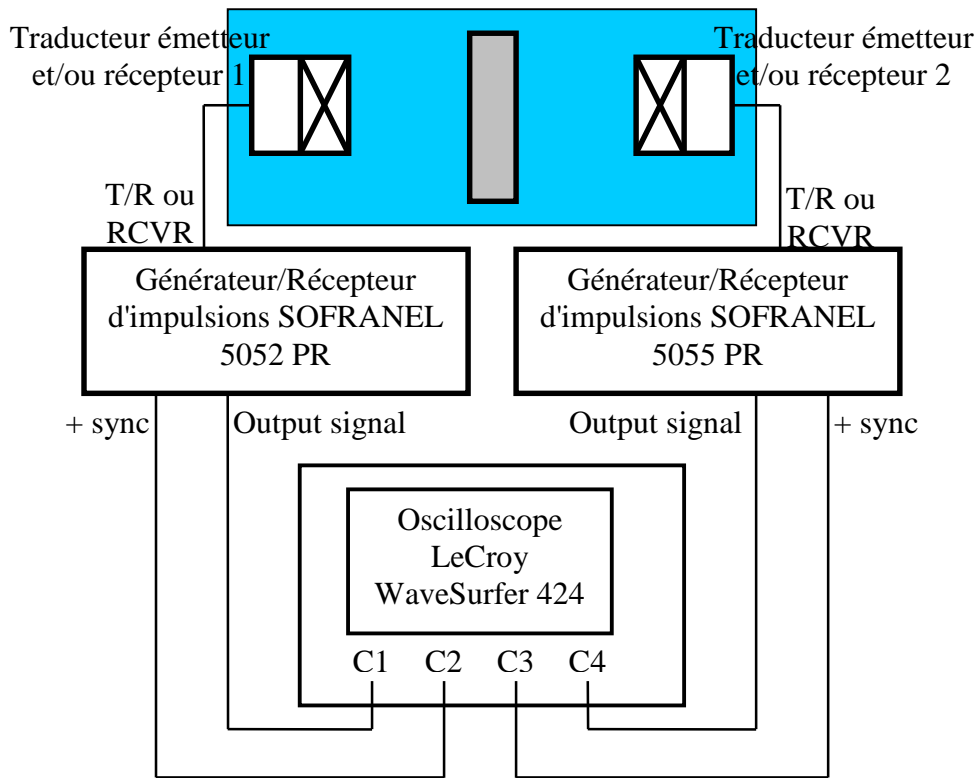


Figure IV.5 : Schéma de la chaîne de génération et d'acquisition des signaux ultrasonores.

Hormis pour le couple de transducteurs 1 MHz, la distance entre les transducteurs et la face de l'échantillon en regard est réglée à la distance  $I_0$  (limite champ proche - champ lointain). Cela permet de combiner les avantages du champ proche et du champ lointain à savoir, respectivement un faisceau pas ou peu divergent et une amplitude du champ ultrasonore peu fluctuante avec la distance. Pour le couple de transducteurs 1 MHz, les mesures sont faites en champ lointain à 72 mm par rapport à l'échantillon, car la distance  $I_0$  est trop courte pour pouvoir être imposée avec ce dispositif expérimental.

#### IV.2.3.5. La méthode expérimentale

##### IV.2.3.5.1. Mesure de la vitesse du son dans le silicium

Il est vérifié, par la mesure, que la vitesse du son dans l'échantillon est bien égale à celle fournie dans la littérature. La vitesse ultrasonore est mesurée à partir du temps de vol entre deux échos successifs. Il est supposé ici que le silicium est non-dispersif, c'est-à-dire que la vitesse de phase ultrasonore est indépendante de la fréquence sur la largeur de bande du signal ultrasonore transmis.

Une première mesure est réalisée avec les capteurs 5 MHz en mesurant le temps de vol entre le premier écho réfléchi par la face de l'échantillon en regard du traducteur émetteur, et le deuxième écho réfléchi par la face arrière de l'échantillon. Elle permet d'obtenir  $c_S = 8432$  m/s. Une seconde mesure est réalisée en mesurant le temps de vol entre le premier écho transmis au travers de l'échantillon, et le deuxième écho transmis après avoir effectué un aller-retour dans l'épaisseur. Elle donne  $c_S = 8428$  m/s. Ces valeurs sont très proches de celles données dans la littérature (cf. tableau IV.4).

Matériau	Masse volumique en kg/m <sup>3</sup>	Vitesse des ondes longitudinales en m/s	Référence
Eau à 1 atm et à 20°C	1000	1480	[Del72]
Silicium [100] à 20°C	2329	8430	[Roy96, Lam95]

Tableau IV.4 : Valeurs de la littérature pour la vitesse et la masse volumique des matériaux utilisés dans cette expérience.

#### IV.2.3.5.2. Mesure du coefficient de réflexion de l'échantillon de référence

Il est rappelé que l'échantillon de référence est un échantillon dont les deux faces sont polies-miroir. La géométrie quasi-parfaite de ces faces permet d'utiliser les formules théoriques "classiques" pour calculer les coefficients de transmission et réflexion au niveau de ces faces sans effectuer aucune mesure, à condition de connaître certaines propriétés du solide  $S$  (silicium) et du liquide  $L$  (eau). Les coefficients sont calculés en utilisant les relations de (IV.9) et (IV.10) où les impédances acoustiques sont données par (IV.6) et les valeurs de la littérature pour la vitesse et la masse volumique des matériaux sont fournies au tableau IV.4. Les coefficients de réflexion et transmission en pression dans le sens solide vers liquide sont respectivement  $r_{pSL} = -0,86$  et  $t_{pSL} = 0,14$ . Dans le sens liquide vers solide, ils sont respectivement  $r_{pLS} = 0,86$  et  $t_{pLS} = 1,86$ . Il est toutefois remarqué que ces formules sont limitées à l'hypothèse d'incidence normale du faisceau, et négligent la divergence du faisceau.

Les valeurs calculées sont à comparer aux mesures réalisées suivant la méthode expérimentale proposée ici. Elle consiste à acquérir à la fois les signaux transmis et réfléchis (Fig. IV.6) et à isoler les deux premiers échos de chaque signal. Le premier et le second écho du signal réfléchi sont respectivement noté  $A_1^R$  et  $A_2^R$ . Le premier et le second écho du signal transmis sont respectivement noté  $A_1^T$  et  $A_2^T$ . Il s'agit d'une méthode originale de mesure du coefficient de réflexion. La mise en équation du problème (cf. annexe 3) suppose que

l'atténuation par divergence du faisceau est identique pour tous les signaux mesurés. Le coefficient de réflexion en pression dans le sens solide vers liquide s'exprime alors :

$$|r_{pSL}(f)| = \sqrt{\frac{1}{1 + \frac{|A_2^R(f)| \cdot |A_1^T(f)|}{|A_1^R(f)| \cdot |A_2^T(f)|}}} \quad (IV.2)$$

Cette expression est valide sans avoir à négliger l'atténuation dans l'eau. Un autre avantage de cette méthode est qu'elle ne nécessite pas d'effectuer une mesure sans échantillon; c'est-à-dire l'enregistrement d'un signal ultrasonore supplémentaire pour lequel l'amplification de la mesure doit être égale à celle des cas "avec échantillon". En revanche, le coefficient de réflexion est calculé à partir de 4 échos différents, ce qui augmente l'incertitude.

La valeur de  $|r_{pSL}|$  obtenue par la formule (IV.2) à partir des signaux mesurés avec le couple de transducteurs 5 MHz est égale à 0,86 sur leur largeur de bande. Ainsi, les formules théoriques classiques décrivent bien les coefficients de transmission et réflexion à une interface silicium – eau très lisse.

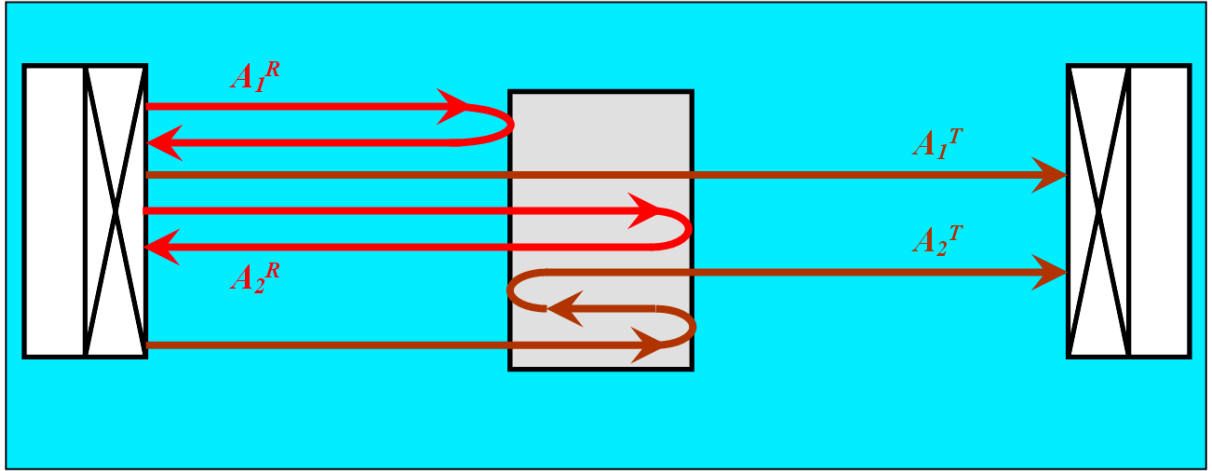


Figure IV.6 : Trajets des signaux ultrasonores pour la méthode de mesure expérimentale du coefficient de réflexion.

#### IV.2.3.5.3. Méthode de mesure pour les échantillons gravés hydrophobes

Il est rappelé que lorsqu'un échantillon gravé hydrophobe est immergé dans l'eau, les trous cylindriques sont remplis de gaz (air et vapeur d'eau) et l'interface est donc composite. La méthode de mesure des coefficients de transmission pour ces échantillons consiste à coupler des mesures réalisées avec l'échantillon de référence à des mesures réalisées avec ces échantillons selon une même méthode (Fig. IV.7). Cette méthode consiste à générer et



enregistrer des échos qui sont transmis au travers de l'échantillon dans un sens puis dans l'autre. Cela permet d'étudier l'effet du sens de propagation des ultrasons vis-à-vis de la face gravée des échantillons sans avoir à tourner l'échantillon entre deux séries de mesures.

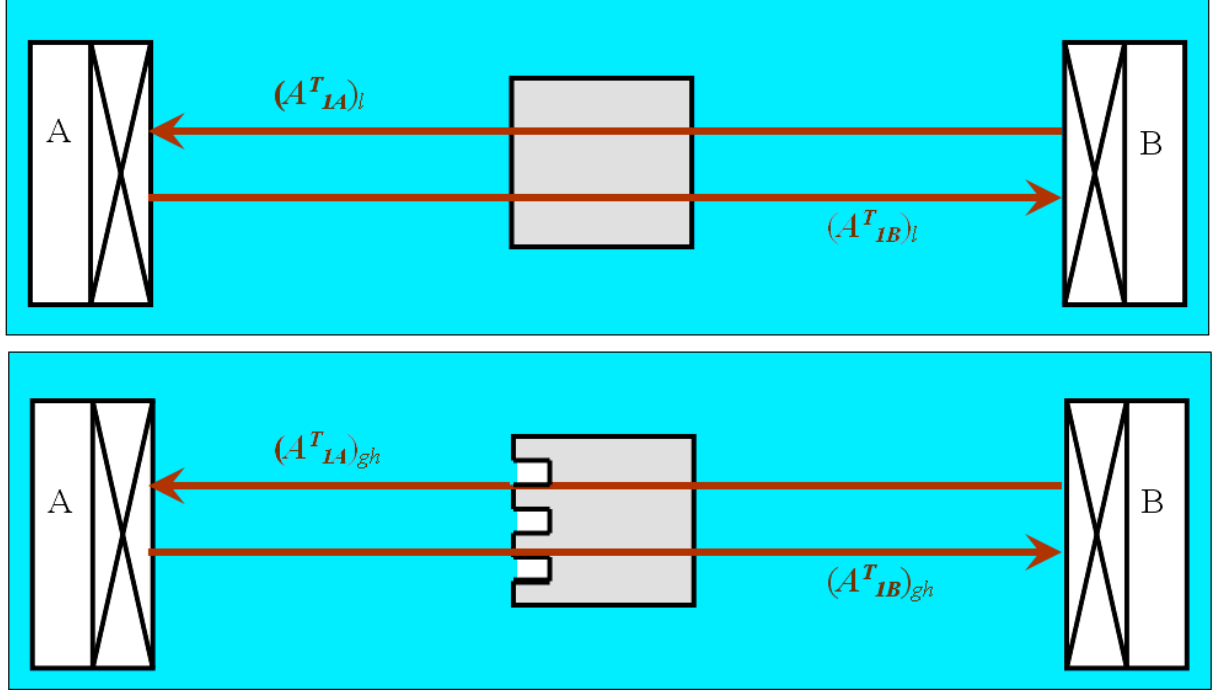


Figure IV.7 : Trajet des signaux ultrasonores dans la méthode de mesure pour les échantillons gravés hydrophobes.

Pour l'échantillon de référence et pour chaque échantillon gravé hydrophobe, il faudra donc enregistrer 2 signaux transmis à travers l'échantillon. Le premier correspond au signal pour lequel le transducteur A est émetteur, c'est-à-dire le signal comprenant l'écho  $(A^T_{IB})_{(l \text{ ou } gh)}$ . Le second correspond au signal pour lequel le transducteur B est émetteur, c'est-à-dire le signal comprenant l'écho  $(A^T_{IA})_{(l \text{ ou } gh)}$ . La mise en équation du problème (cf. annexe 3) permet d'obtenir les coefficients de transmission dans le sens liquide vers solide (trajet A vers B) et solide vers liquide (trajet B vers A) :

$$\begin{aligned} |t_{pLS}^{gh}(f)| &= \frac{|(A^T_{IB})_{gh}(f)|}{|(A^T_{IB})_l(f)|} |t_{LS}^l(f)| \\ |t_{pSL}^{gh}(f)| &= \frac{|(A^T_{IA})_{gh}(f)|}{|(A^T_{IA})_l(f)|} |t_{SL}^l(f)| \end{aligned} \quad (IV.3)$$

Les  $FTI_t$  correspondantes s'expriment ainsi :

$$\begin{aligned} |FTI_{t_{LS}}(f)| &= \frac{|(A_{1B}^T)_{gh}(f)|}{|(A_{1B}^T)_l(f)|} \\ |FTI_{t_{SL}}(f)| &= \frac{|(A_{1A}^T)_{gh}(f)|}{|(A_{1A}^T)_l(f)|} \end{aligned} \quad (IV.4)$$

#### IV.2.3.6. Acquisition des signaux et traitement

Les signaux enregistrés (Fig. IV.8) sont le résultat d'une moyenne effectuée sur 1024 signaux de façon à réduire le bruit électronique. Chaque écho est isolé temporellement (Fig. IV.9) puis subit une transformée de Fourier (Fig. IV.10). A partir des spectres d'amplitudes obtenus et des formules (IV.4), les  $FTI_{t_{SL}}$  et  $FTI_{t_{LS}}$  de chacun des échantillons sont calculés.

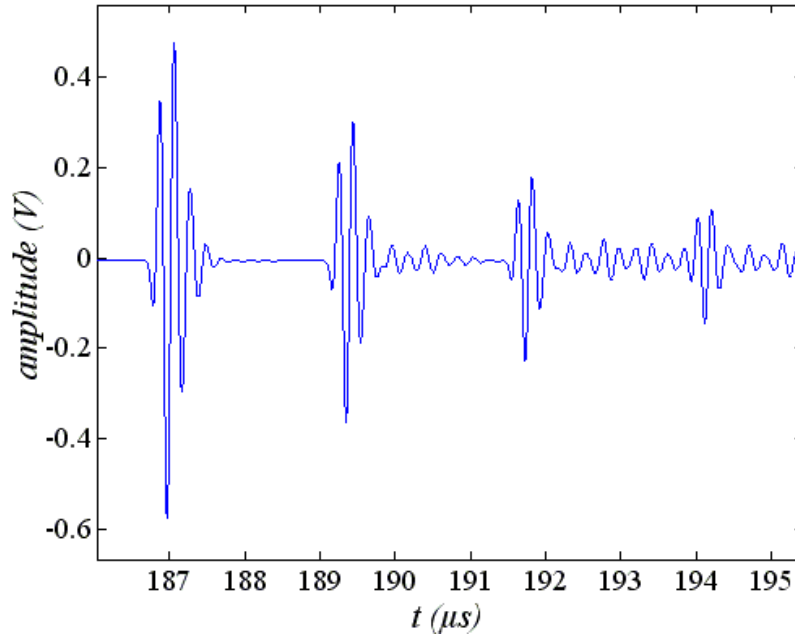


Figure IV.8 : Zoom du signal acquis : échantillon E12 dans le sens solide vers liquide.

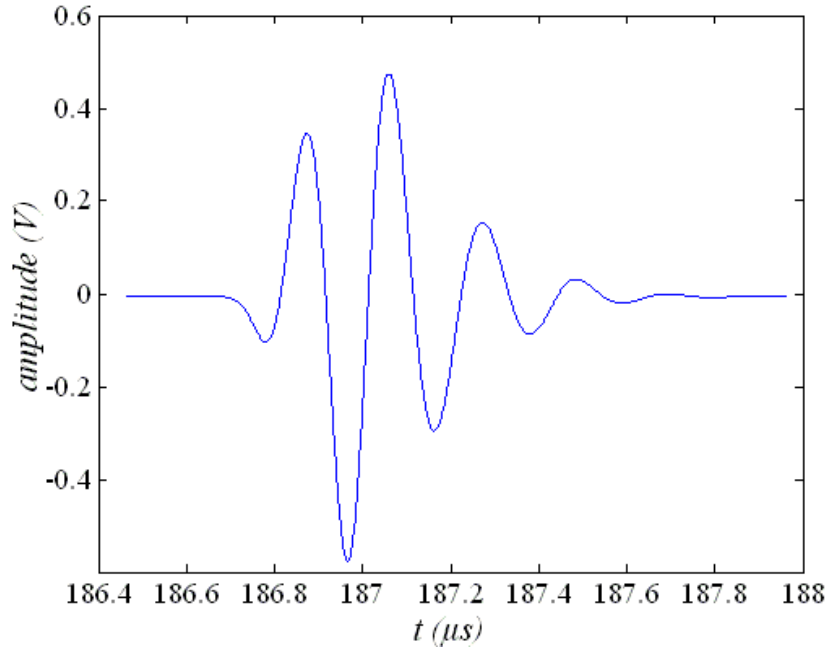


Figure IV.9 : Premier écho isolé : échantillon E12 dans le sens solide vers liquide.

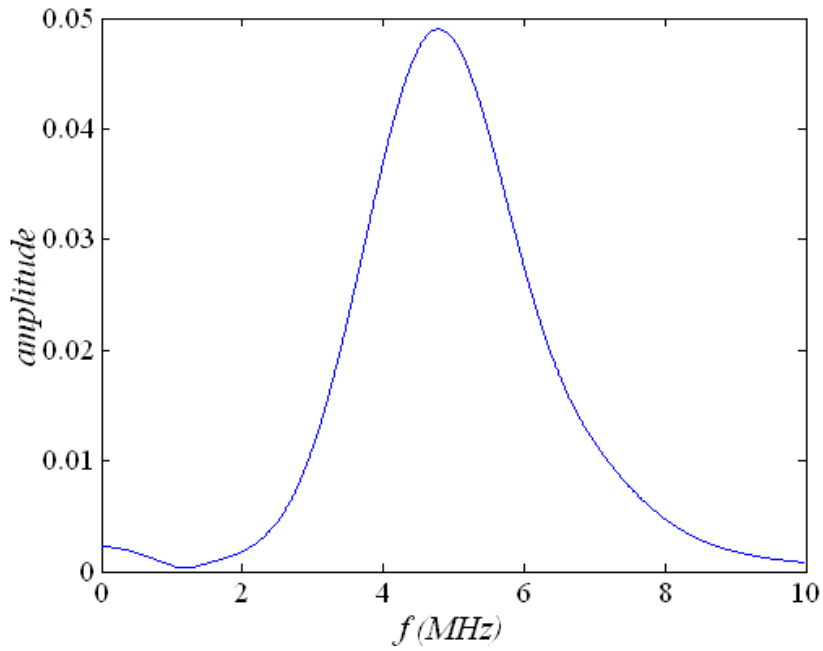


Figure IV.10 : Transformée de Fourier du premier écho isolé : échantillon E12 dans le sens solide vers liquide.

#### IV.2.3.7. Résultats

Dans cette partie, les résultats montrant l'évolution de la  $FTI_t$  en fonction des paramètres  $f$ ,  $d$ , et  $\tau$  sont présentés. Les courbes  $FTI_t(f)$  correspondant aux expressions (IV.4) sont tracées pour tous les échantillons utilisés avec les trois couples de transducteurs sur une partie de leur largeur de bande (Fig. IV.11 et IV.12) pour le niveau d'énergie 4.

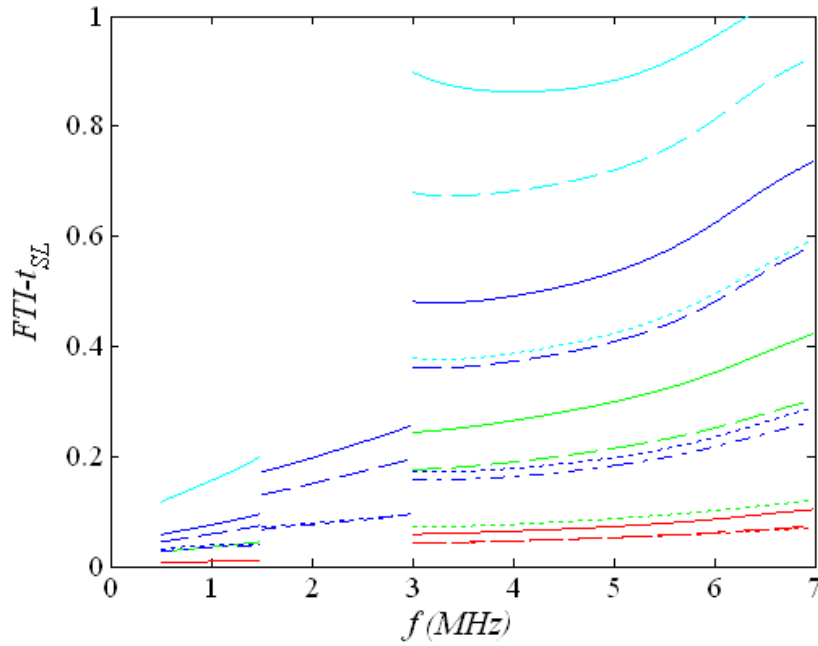


Figure IV.11 :  $FTI_{t_{SL}}$  tracée en fonction de la fréquence. En cyan :  $\tau = 0,9$  ; en bleu :  $\tau = 0,8$  ; en vert :  $\tau = 0,7$  ; en rouge :  $\tau = 0,5$ . Trait continu :  $d = 30 \mu m$  ; trait tireté :  $d = 20 \mu m$  ; trait pointillé :  $d = 10 \mu m$  ; trait mixte :  $d = 10 \mu m$  et  $h = 10 \mu m$ .

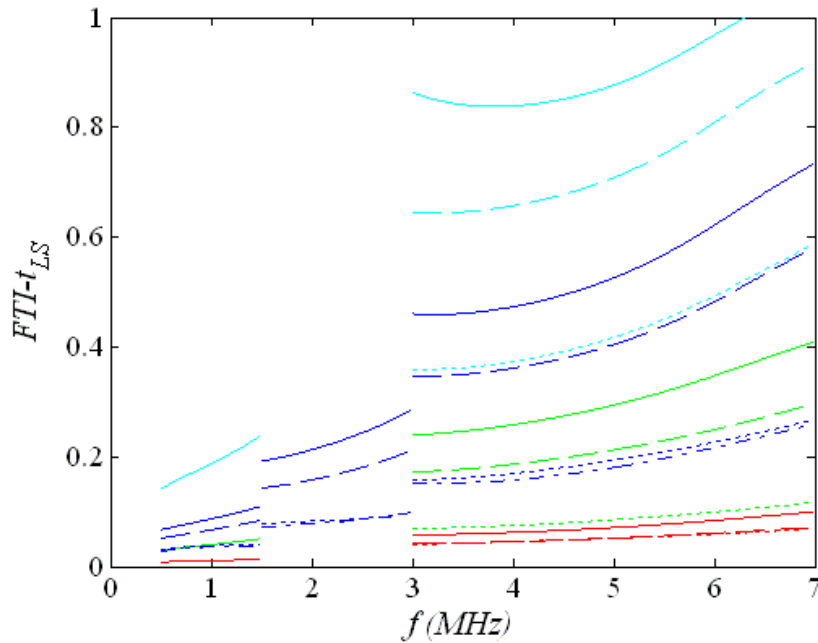


Figure IV.12 :  $FTI_{t_{LS}}$  tracée en fonction de la fréquence. En cyan :  $\tau = 0,9$  ; en bleu :  $\tau = 0,8$  ; en vert :  $\tau = 0,7$  ; en rouge :  $\tau = 0,5$ . Trait continu :  $d = 30 \mu m$  ; trait tireté :  $d = 20 \mu m$  ; trait pointillé :  $d = 10 \mu m$  ; trait mixte :  $d = 10 \mu m$  et  $h = 10 \mu m$ .

L'effet indésirable "d'escalier" observé entre les trois largeurs de bande pourrait trouver son origine dans le traitement fréquentiel des échos. En effet, ce dernier déformerait le spectre

sur les bords de la largeur de bande des échos. Il est vrai que la transformée de Fourier est effectuée sur une fenêtre temporelle très étroite, encadrant tout juste l'écho. Il est admis que les valeurs centrales (1 - 2,25 - 5 MHz) ne sont pratiquement pas affectées par cette déformation du spectre. En effet, les valeurs de  $FTI_t$  obtenues avec tous les échantillons aux fréquences 1, 2,25 et 5 MHz sont extrêmement proches de celles obtenues en calculant la  $FTI_t$ , non plus à partir d'une valeur de l'amplitude du spectre pour une fréquence donnée, mais à partir de l'amplitude crête-à-crête de l'écho.

Cet effet pourrait aussi être dû à la différence d'amplitude de pression acoustique générée par les différents couples de transducteurs au niveau de l'interface composite. Il traduirait alors une non-linéarité du coefficient de transmission. Cependant, il est remarqué que les résultats obtenus pour les trois différents niveaux d'énergie (2, 3 et 4) sont identiques. Il faut toutefois noter que l'amplitude des signaux transmis n'est que 2 fois inférieure pour le niveau d'énergie le plus faible (2) par rapport au niveau le plus élevé (4).

Enfin, une variation du positionnement et de l'orientation des échantillons gravés hydrophobes par rapport à l'échantillon de référence pourraient aussi expliquer cet effet indésirable. A titre indicatif, des essais de répétabilité (15 mesures) ont été réalisés avec l'échantillon E5 pour évaluer les erreurs aléatoires (telles que des erreurs de positionnement de l'échantillon par exemple). L'incertitude de mesure a été calculée, en considérant seulement ces erreurs aléatoires, grâce au calcul de la moyenne et de l'écart type des mesures de ces essais de répétabilité. La figure IV.13 montre la moyenne encadrée par les valeurs extrêmes intégrant l'incertitude. L'incertitude calculée est donc très faible et ne peut donc pas expliquer l'effet indésirable d'escalier.

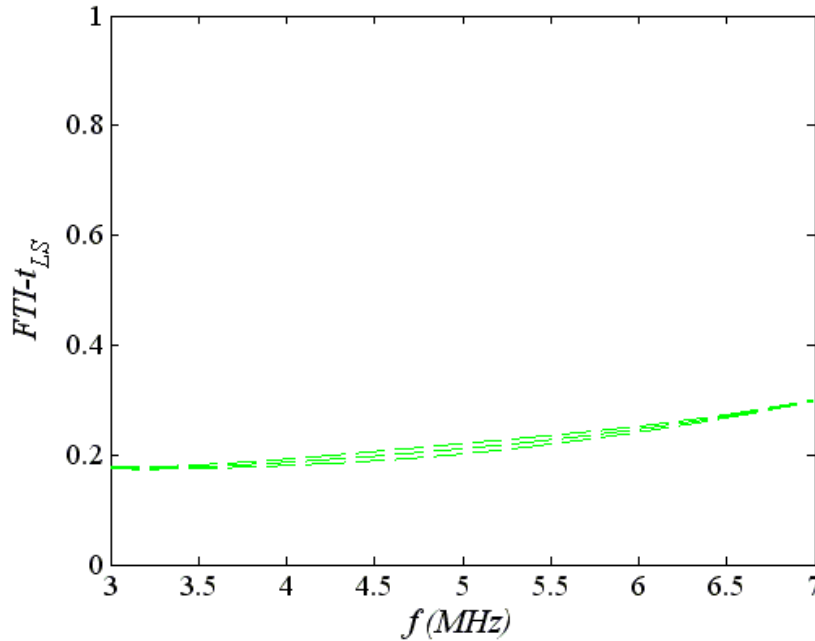


Figure IV.13 : Moyenne de la  $FTI_t$  encadrée par les valeurs extrêmes intégrant l'incertitude liée aux erreurs aléatoires sur une partie de la largeur de bande du traducteur 5 MHz pour le niveau d'énergie 4.

Il aurait été intéressant d'exploiter cette évolution de la  $FTI_t$  avec la fréquence pour pouvoir détecter une éventuelle résonance des ménisques des poches de gaz. A cause de cet effet indésirable, l'observation des figures IV.11 et IV.12 ne permet pas d'affirmer avec certitude que la gamme 0,5 - 7 MHz n'englobe pas d'éventuelles fréquences de résonance.

Il est observé une augmentation générale de la  $FTI_t$  avec la fréquence. Par ailleurs, pour chaque couleur (c'est-à-dire pour une même valeur de  $\tau$ , ou du moins pour des valeurs de  $\tau$  très proches comme l'indique le tableau I.5) les courbes sont toutes rangées dans un même ordre. La courbe du dessus correspond au diamètre des trous cylindriques le plus grand :  $d = 30 \mu\text{m}$ , et la courbe du dessous au diamètre le plus petit  $d = 10 \mu\text{m}$ . De plus, le code couleur des courbes indique que la  $FTI_t$  augmente avec  $\tau$ .

La courbe correspondant à l'échantillon E7bis comportant des trous cylindriques de profondeur  $10 \mu\text{m}$  au lieu de  $30 \mu\text{m}$  comme tous les autres échantillons est tracée en trait mixte. Pour les trois gammes de fréquence, cette courbe est pratiquement confondue (voire légèrement en dessous) avec celle de l'échantillon E7, pratiquement identique en tout point sauf que la profondeur de ses trous est de  $30 \mu\text{m}$ . Il semble donc que l'effet de la profondeur des trous soit négligeable sur le coefficient de transmission. Cependant, avec seulement deux valeurs différentes du paramètre  $h$ , il est difficile de tirer une conclusion générale sur

l'influence de la profondeur des poches de gaz, ou de l'épaisseur de l'interface composite, sur le couplage acoustique.

Par ailleurs, les figures IV.11 et IV.12 font apparaître un résultat intéressant. Les courbes obtenues dans le sens solide vers liquide (Fig. IV.11) sont pratiquement identiques à celles obtenues dans le sens liquide vers solide (Fig. IV.12). Cela signifie donc que le coefficient de transmission de l'interface composite est le même pour les deux sens de propagation de l'onde.

En conclusion, la transmission, que ce soit dans un sens ou dans l'autre, est d'autant meilleure que la fréquence est élevée et que la fraction surfacique de gaz à l'interface est faible. Pour une même valeur de fraction surfacique de gaz, la transmission est d'autant meilleure que le diamètre des diffuseurs mais aussi l'espace entre les diffuseurs est grand. Autrement dit, la transmission s'améliore lorsque le domaine de diffusion se rapproche du domaine stochastique.

A partir des courbes précédentes, en prenant les valeurs de  $FTI_t$  pour les fréquences centrales des couples de traducteurs 1 MHz et 5 MHz, les courbes  $FTI_t(\tau)$  sont tracées aux figures IV.14 et IV.15 pour les trois valeurs de diamètre des trous cylindriques (seulement pour  $d = 30 \mu\text{m}$  pour la fréquence 1 MHz). Là encore, les courbes obtenues dans le sens solide vers liquide (Fig. IV.14) sont pratiquement identiques à celles obtenues dans le sens liquide vers solide (Fig. IV.15). Il apparaît aussi clairement que la  $FTI_t$  augmente avec la fréquence et le diamètre des trous cylindriques. Autrement dit, elle augmente avec le paramètre  $d/\lambda$ . Cette tendance pourrait s'expliquer aussi par le fait que lorsque le paramètre  $d/\lambda$  augmente, l'excitation s'éloigne de la résonance des poches de gaz.

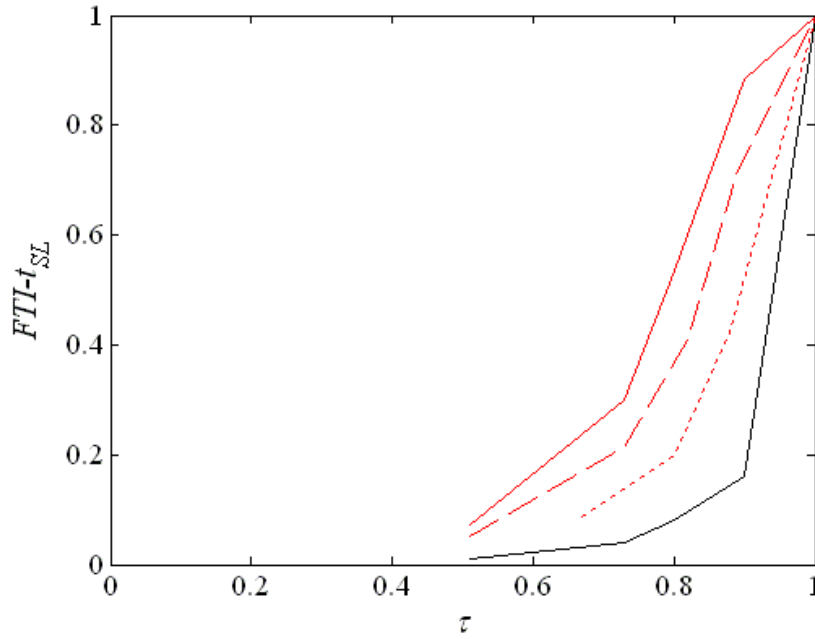


Figure IV.14 :  $FTI_t$  en fonction de  $\tau$  dans le sens solide vers liquide. En rouge :  $f = 5 \text{ MHz}$  ; en noir :  $f = 1 \text{ MHz}$ . Trait continu :  $d = 30 \mu\text{m}$  ; trait tireté :  $d = 20 \mu\text{m}$  ; trait pointillé :  $d = 10 \mu\text{m}$ .

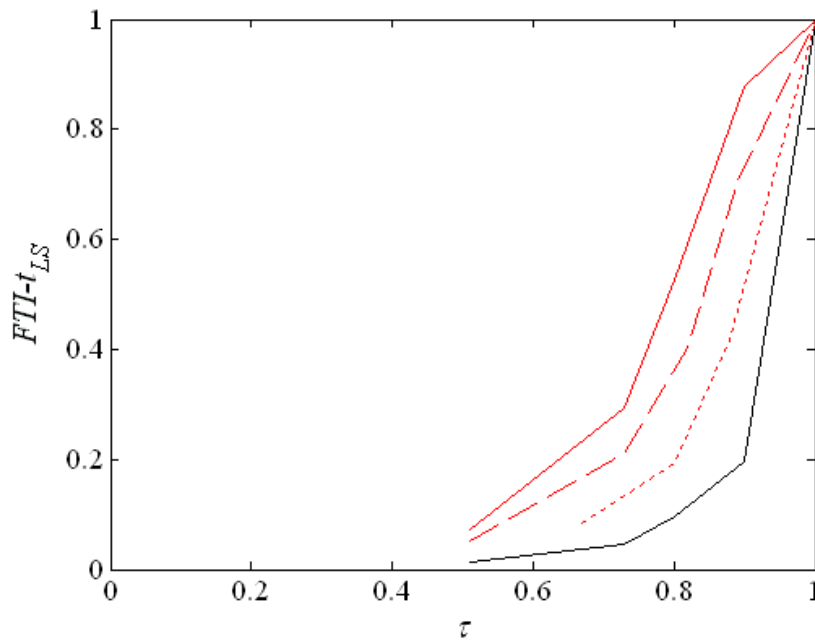


Figure IV.15 :  $FTI_t$  en fonction de  $\tau$  dans le sens liquide vers solide. En rouge :  $f = 5 \text{ MHz}$  ; en noir :  $f = 1 \text{ MHz}$ . Trait continu :  $d = 30 \mu\text{m}$  ; trait tireté :  $d = 20 \mu\text{m}$  ; trait pointillé :  $d = 10 \mu\text{m}$ .

Il est donc suggéré que les plus hautes fréquences seraient mieux transmises à l'interface composite. S'il est possible d'agir sur la rugosité du diaphragme des transducteurs, il faudra



privilégier une rugosité pour laquelle, à fraction surfacique de gaz donnée, les poches de gaz et les espaces entre les poches de gaz sont grands.

### IV.3. Bibliographie sur la transmission des ultrasons aux interfaces en incidence normale

#### IV.3.1. Interfaces planes et lisses

Il s'agit ici d'étudier la transmission des ondes ultrasonores en incidence normale à l'interface plane et lisse entre un milieu solide et un milieu liquide. Pour comprendre les phénomènes mis en jeu, le cas d'une seule interface est tout d'abord introduit. Ensuite, le cas de deux interfaces successives est traité. Enfin, le cas plus compliqué d'une interface imparfaite entre deux solides est étudié.

##### IV.3.1.1. Une seule interface

Une interface plane et lisse séparant un milieu liquide et un milieu solide est considérée. Lorsqu'un faisceau incident dans le milieu liquide arrive à l'interface, une partie de ce faisceau est réfléchi et l'autre partie est transmise. Pour une onde acoustique dans un milieu élastique, la pression acoustique  $p_A$  est reliée à la vitesse particulaire  $v$  par la relation [Roy96] :

$$p_A = \rho c v, \quad (\text{IV.5})$$

où  $c$  est la vitesse de phase des ondes dans le milieu et  $\rho$  est la masse volumique du milieu. Le rapport  $p_A/v = \rho c$  est appelé impédance acoustique caractéristique du matériau et est noté  $Z$ . Pour un fluide,  $Z$  est donné par :

$$Z = \rho c = \sqrt{\rho E} = \sqrt{\frac{\rho}{\chi}} \quad (\text{IV.6})$$

puisque  $c^2 = E/\rho = 1/(\rho\chi)$  où  $E$  est le module d'élasticité du fluide, inverse du coefficient de compressibilité  $\chi$ . Pour un solide isotrope illimité ou pour un cristal du système cubique tel que le silicium (constantes élastiques telles que  $C_{11} = C_{22} = C_{33}$ ) pour lequel la direction de propagation de l'onde longitudinale est parallèle à l'un des axes de symétrie du cristal,  $c^2 = C_{11}/\rho$ .

Dans le cas d'une onde plane en incidence normale, les équations de continuité des pressions et des vitesses à l'interface ont respectivement pour expression [Pie91, Roy96] :

$$p_{Ai} + p_{Ar} = p_{At} \quad (\text{IV.7})$$

$$v_i + v_r = v_t \quad (\text{IV.8})$$

où les indices  $i$ ,  $r$  et  $t$  font respectivement référence à l'onde incidente, réfléchie et transmise. En utilisant les relations (IV.1) et (IV.6), les équations de continuité permettent de déterminer les coefficients de réflexion de la pression  $r_p$  et de la vitesse  $r_v$ , ainsi que les coefficients de transmission de la pression  $t_p$  et de la vitesse  $t_v$  (avec  $t_p = 1 + r_p$  et  $t_v = 1 + r_v$ ) en fonction des impédances acoustiques  $Z$  des deux milieux (considérés ici tous deux élastiques et isotropes) :

$$r_p = \frac{p_{Ar}}{p_{Ai}} = \frac{Z_2 - Z_1}{Z_1 + Z_2} = -r_v \quad (\text{IV.9})$$

$$t_p = \frac{p_{At}}{p_{Ai}} = \frac{2Z_2}{Z_1 + Z_2} = \frac{Z_2}{Z_1} t_v \quad (\text{IV.10})$$

où l'indice 1 fait référence au milieu 1 où les ondes incidente et réfléchie se propagent et l'indice 2 fait référence au milieu 2 où l'onde transmise se propage. Il est bien connu qu'à une interface solide-air ou liquide-air le coefficient de réflexion en vitesse est pratiquement égal à 1 (ou à  $-1$  pour le coefficient de réflexion en pression) et l'onde est presque totalement réfléchie à l'interface.

#### IV.3.1.2. Interfaces successives : milieu multicouche

La réflexion et la transmission d'une onde plane en incidence normale à travers plusieurs couches de matériaux élastiques et isotropes sont considérées (Fig. IV.16) [Pie91]. Dans chaque couche, les conditions aux limites internes, continuité de  $p_A$  et  $v$ , permettent de définir une impédance caractéristique  $Z_{local}(x)$  fonction de  $x$  comme étant le rapport local de  $p_A$  sur  $v$ , qui est continue à travers les interfaces. Dans chaque couche, une impédance caractéristique intrinsèque ( $Z_1$  à  $Z_N$  pour les couches 1 à  $N$ ) peut être définie à partir de la relation (IV.6).

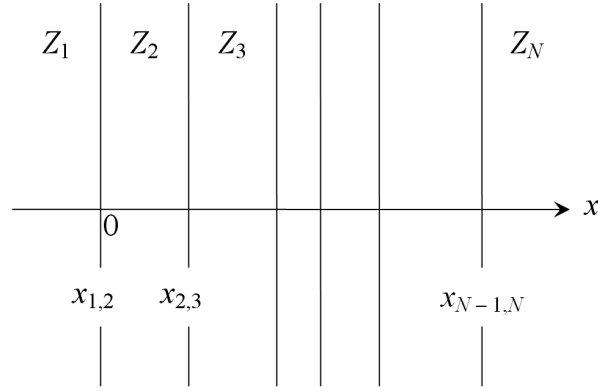


Figure IV.16 : Transmission-réflexion d'une onde plane en incidence normale à travers une succession de couches de matériaux élastiques et isotropes de différentes impédances caractéristiques intrinsèques.  $x_{N-1,N}$  correspond à la coordonnée en  $x$  de l'interface entre la  $(N-1)$ ème et la  $N$ ème couche.

Brekhovskikh [Bre60] a développé une technique pour l'analyse de ces problèmes de transmission-réflexion au travers d'un milieu multicouche. Elle est basée sur la détermination intermédiaire de  $Z_{local}$  à l'interface  $x_{1,2}$  entre la première et la seconde couche. Une fois que  $Z_{local}(x_{1,2})$  est déterminée, par analogie avec (IV.9), le coefficient de réflexion en pression est donné par :

$$r_p = \frac{Z_{local}(x_{1,2}) - Z_1}{Z_{local}(x_{1,2}) + Z_1} \quad (IV.11)$$

et les fractions de l'énergie incidente réfléchie et transmise sont  $|r_p|^2$  et  $1 - |r_p|^2$ .

Pour déterminer  $Z_{local}(x_{1,2})$ , il faut commencer avec l'impédance caractéristique locale "connue" à la dernière interface  $x_{N-1,N}$ . Si la dernière couche est considérée comme étant semi-infinie,  $Z_{local}(x_{N-1,N}) = Z_N$ . Pour déterminer l'impédance locale à l'interface entre la  $(N-2)$ ème et la  $(N-1)$ ème couche, il faut utiliser un "théorème de translation d'impédance", qui établit que, à l'intérieur d'une couche homogène d'épaisseur  $d_c$ , l'impédance locale  $Z_{local}(x - d_c)$  en  $x - d_c$  est reliée à celle en  $x$  et à l'impédance caractéristique intrinsèque de la couche  $Z_{int}$  par :

$$Z_{local}(x - d_c) = Z_{int} \frac{Z_{local}(x) \cos kd_c - iZ_{int} \sin kd_c}{Z_{int} \cos kd_c - iZ_{local}(x) \sin kd_c} \quad (IV.12)$$

où  $k = \omega p / Z_{int} = \omega / c$  est le nombre d'onde et  $\omega$  la pulsation de l'onde. Cette équation de translation d'impédance, ajoutée à la continuité de  $Z_{local}$  au travers des interfaces, permet de remonter, couche par couche, de  $Z_{local}(x_{N-1,N})$  à  $Z_{local}(x_{1,2})$ .

Pour illustrer cette analyse avec un cas simple, le cas de trois couches est considéré (Fig. IV.17). L'une d'elle, d'épaisseur  $d_c$  et d'impédance intrinsèque  $Z_2$ , étant prise en sandwich

entre les deux autres qui sont des demi-espaces semi-infinis d'impédances intrinsèques respectives  $Z_1$  et  $Z_3$ . L'impédance locale à l'interface (1,2) est obtenue à partir de l'équation (IV.12) où  $Z_{local}(x)$  et  $Z_{int}$  sont identifiées comme étant respectivement  $Z_3$  et  $Z_2$ . Si bien que le coefficient de réflexion devient :

$$r_p = \frac{(Z_2 Z_3 - Z_1 Z_2) \cos k_2 d_c - i(Z_2^2 - Z_1 Z_3) \sin k_2 d_c}{(Z_2 Z_3 + Z_1 Z_2) \cos k_2 d_c - i(Z_2^2 + Z_1 Z_3) \sin k_2 d_c}. \quad (IV.13)$$

Ce coefficient de réflexion est périodique dans l'épaisseur  $d_c$  avec une longueur de répétition  $\pi/k_2$ . Il est aussi périodique en fréquence. Le coefficient de transmission est alors obtenu à partir de la relation :  $t_p = 1 + r_p$ .

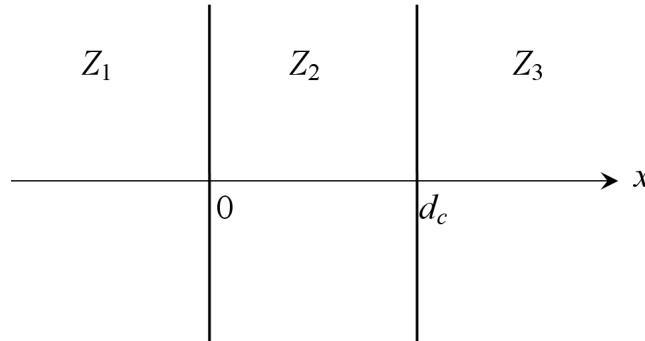


Figure IV.17 : Succession de trois couches de matériaux élastiques et isotropes de différentes impédances caractéristiques intrinsèques.

### IV.3.2. Interface imparfaite entre deux solides : modèle masse-ressort

Dans cette partie, le modèle masse-ressort est présenté puis il est appliqué au cas de la transmission des ultrasons à une interface composite contrôlée. Il s'agira alors de définir une raideur interfaciale théorique originale puisque cette approche n'a jamais été envisagée auparavant dans l'étude de la propagation des ultrasons à une interface composite.

#### IV.3.2.1. Introduction

Cette étude présente certains points communs avec de nombreux travaux sur la modélisation de la transmission/réflexion des ultrasons à une interface de contact partiel. Les modèles à ressort distribué sont des outils utiles pour les mesures de coefficient de transmission ou réflexion à travers une interface de contact partiel. Dans ce domaine, Kendall et Tabor [Ken71] ont été les premiers à introduire la notion de raideur de l'interface. Le concept de ressort distribué à l'interface pour décrire le contact a ensuite été introduit par Tattersall [Tat73]. Baik et Thompson [Bai84] ont développé un modèle quasi-statique qui est

une extension de celui de Tattersall puisqu'il intègre l'effet de la masse de l'interface. Baltazar *et al.* [Bal02] ont étendu le modèle à ressort, en utilisant des ressorts normaux et transverses, pour prédire le coefficient de réflexion à une interface rugueuse entre deux solides à la fois en incidence normale et incidence oblique.

La description d'interfaces imparfaites à partir du modèle à ressort, ou plus généralement à partir du modèle masse-ressort, s'applique dans des domaines variés parmi lesquels la caractérisation d'un réseau de fissures, pores ou inclusions coplanaires [Bai84, Mar92] ; du contact rugueux entre deux solides [Hai80, Dri96, Dwy01, Qui02, Tho05] ; de la liaison de joints adhésifs [Tat73, Lav98, Bro03] ; la possible non-détection de fissures sous contraintes de compression [Ang85] ; ou encore la détermination de l'épaisseur de films d'huile dans des paliers à roulements [Dwy04]. Par exemple, Baik et Thompson [Bai84] ont prédit l'interaction des ultrasons avec des interfaces caractérisées par un réseau de pores ou d'inclusions. Margetan *et al.* [Mar92] ont alors mesuré la réflexion à partir de ce type d'interface avec des caractéristiques et une géométrie connue, et ont obtenu un bon accord avec le modèle masse-ressort. Haines [Hai80] a considéré l'interaction des ultrasons avec une interface de contact partiel entre deux solides, et a obtenu le coefficient de réflexion à partir d'un modèle à ressort. Laverentyev *et al.* [Lav98] ont prédit la réponse de deux interfaces parallèles, représentant une liaison adhésive, en modélisant les interfaces comme une série de ressorts. La description de la région interfaciale comme une fine couche effective avec des propriétés effectives moyennées a été étudiée par Rokhlin et Wang [Rok91]. Ils ont montré que, dans le régime basse fréquence, le modèle multicouche était équivalent à un modèle à ressort.

À notre connaissance, il n'existe pas dans la littérature d'exemples d'application de ce modèle à la caractérisation d'une interface imparfaite, telle qu'une interface composite, entre un solide et un liquide.

#### IV.3.2.2. Présentation du modèle

Le modèle masse-ressort, qui va être utilisé pour étudier la transmission des ultrasons à une interface composite dans le domaine de Rayleigh, est celui développé par Baik et Thompson [Bai84].

Une interface imparfaite entre deux milieux 1 et 2 est considérée. Celle-ci peut correspondre à une interface rugueuse entre deux solides, à un réseau de fissures, de pores ou d'inclusions coplanaires au sein d'un solide. L'approche proposée dans cette thèse consiste à

considérer que cette interface imparfaite peut correspondre aussi à une interface composite entre un solide et un liquide.

La diffusion des ultrasons à cette interface imparfaite située au voisinage du plan  $x = 0$  entre deux demi-espaces est illustrée à la figure IV.18(a). Ici, une onde harmonique plane est supposée être convertie en une onde transmise et une onde réfléchi, dont la somme de leur énergie est égale à celle de l'onde incidente. Cela suppose que les diffuseurs de l'interface imparfaite ainsi que les espaces entre les diffuseurs sont petits devant la longueur d'onde. Sous cette condition, la transmission et la réflexion par l'interface peut être prédite en décrivant l'interface comme une combinaison d'un ressort de raideur surfacique  $K$  et d'une masse surfacique  $M$  distribués, telle qu'illustrée à la figure IV.18(b).

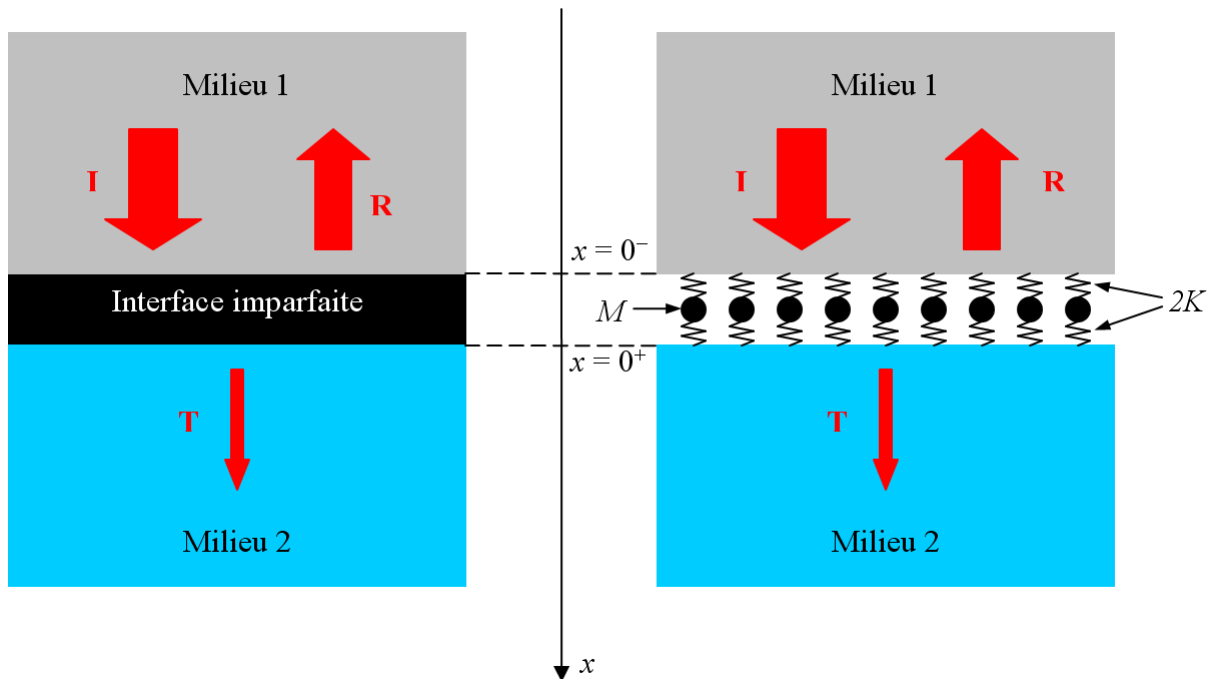


Figure IV.18 : Modèle masse-ressort pour l'interface imparfaite séparant un milieu 1 et un milieu 2 : (a) Représentation de l'onde incidente  $I$ , transmise  $T$  et réfléchi  $R$  ; (b) Interface assimilée à une masse et un ressort distribués.

Dans le modèle de Baik et Thompson l'amortissement de l'interface n'est pas pris en compte. Drinkwater *et al.* [Dri96] expliquent que, dans le régime basse fréquence, les proportions d'ondes transmises et réfléchies dépendent de la raideur de l'interface et dans une moindre mesure de la masse effective et de l'amortissement de l'interface. La masse et l'amortissement de l'interface deviennent en effet moins significatifs lorsque la fréquence diminue. Par ailleurs Pialucha [Pia92] montre que l'amortissement d'une couche interfaciale

n'affecte que très faiblement le coefficient de réflexion. Ainsi, par la suite l'amortissement de l'interface est négligé.

Un jeu de conditions aux limites faisant intervenir la raideur interfaciale  $K$  et la masse interfaciale  $M$  peut être établi afin de prédire correctement la dépendance fréquentielle de la réflexion et de la transmission. Baik et Thompson ont développé une approche basée sur des conditions aux limites modifiées par rapport aux conditions aux limites usuelles qui stipulent que le déplacement et la contrainte sont continus. Ils ont validé leur approche en la comparant à des solutions exactes.

Pour le modèle de la figure IV.18(b), les conditions aux limites modifiées prennent la forme :

$$\frac{\Gamma(0^+) + \Gamma(0^-)}{2} \approx K[u(0^+) - u(0^-)] \quad (\text{IV.14})$$

$$-m\omega^2 \frac{u(0^+) + u(0^-)}{2} \approx \Gamma(0^+) - \Gamma(0^-) \quad (\text{IV.15})$$

où  $u$  est le déplacement,  $\Gamma$  est la contrainte, et  $\omega$  est la pulsation d'une fonction harmonique du temps, de la forme  $e^{i\omega t}$ , qui sera considérée tout au long du raisonnement qui suit. Ici, une approximation quasi-statique est faite. Elle suppose que  $\omega$ , la pulsation de résonance de la combinaison masse-ressort, est telle que  $\omega \ll (4K/M)^{1/2}$ . Avec cette approximation, la masse peut être placée n'importe où sur le ressort. Par exemple, les mêmes équations seraient obtenues en plaçant une masse  $M/2$  à chaque extrémité du ressort. Par ailleurs, il est implicitement supposé dans cette approche que les contraintes associées à l'onde ultrasonore sont suffisamment petites pour que la fraction surfacique de contact ne varie pas durant le cycle de contrainte.

Evidemment, si le ressort distribué est infiniment rigide ( $K = \infty$ ), les conditions aux limites redeviennent celles du cas usuel, pour lesquelles s'appliquent les équations (IV.9) et (IV.10), et représentent une adhésion parfaite. Tandis que s'ils sont infiniment souples ( $K = 0$ ), le cas d'une non-liaison totale est représenté et la frontière du matériau 1 devient une surface libre. Dans ce cas, aucune énergie n'est transmise au second milieu.

Dans la théorie qui suit, les deux milieux sont considérés comme étant idéalement élastiques, tels que leur impédance acoustique caractéristique,  $Z_1$  et  $Z_2$ , sont des quantités réelles et indépendantes de la fréquence. Les conditions aux limites modifiées données par les équations (IV.14) et (IV.15) peuvent être utilisées pour déterminer les coefficients de réflexion et de transmission.

L'onde incidente provenant du matériau 1, qui est longitudinale et en incidence normale par rapport à l'interface, a pour effet de faire varier la séparation entre les deux surfaces et de causer une variation de contrainte transmise à la seconde surface. Le champ de déplacement est donné par :

$$u_1 = U_i e^{-ik_1 x} + U_r e^{ik_1 x} \quad \text{pour } x < 0 \quad (\text{IV.16})$$

$$u_2 = U_t e^{-ik_2 x} \quad \text{pour } x > 0 \quad (\text{IV.17})$$

où les indices "1" et "2" font respectivement référence aux milieux 1 et 2.  $U_i$ ,  $U_r$  et  $U_t$  sont des coefficients complexes donnant l'amplitude et la phase respectivement des ondes incidente ( $i$ ), réfléchie ( $r$ ), et transmise ( $t$ ). Les contraintes associées sont données par :

$$\Gamma_1 = E_1 \frac{\partial u_1}{\partial x}, \quad (\text{IV.18})$$

$$\Gamma_2 = E_2 \frac{\partial u_2}{\partial x}, \quad (\text{IV.19})$$

où  $E_1$  et  $E_2$  sont les modules de compressibilité respectifs des milieux 1 et 2.

L'utilisation des équations (IV.16), (IV.17), (IV.18) et (IV.19) permet de déterminer les coefficients de réflexion,  $r_p$ , et de transmission,  $t_p$  :

$$r_p = \frac{(Z_2 - Z_1) \left( 1 - \frac{M\omega^2}{4K} \right) - i\omega \left( \frac{Z_1 Z_2}{K} - M \right)}{(Z_1 + Z_2) \left( 1 - \frac{M\omega^2}{4K} \right) + i\omega \left( \frac{Z_1 Z_2}{K} + M \right)}, \quad (\text{IV.20})$$

$$t_p = \frac{2Z_2 \left( 1 + \frac{M\omega^2}{4K} \right)}{(Z_1 + Z_2) \left( 1 - \frac{M\omega^2}{4K} \right) + i\omega \left( \frac{Z_1 Z_2}{K} + M \right)}. \quad (\text{IV.21})$$

Ainsi, il est clair que si la raideur interfaciale est infinie ( $K = \infty$ ) et si la masse interfaciale est nulle ( $M = 0$ ), ces expressions se réduisent aux expressions (IV.9) et (IV.10).

Pour rester cohérent avec les précédentes approximations, le terme  $M\omega^2/4K$  doit toujours être petit devant l'unité dans la région de validité des conditions aux limites modifiées. Ce terme est conservé dans ces deux équations pour garantir le critère de conservation de l'énergie  $|R|^2 + |T|^2 = 1$ . Hormis pour la phase, Baik et Thompson montrent que les effets d'un défaut de rigidité ( $K \neq 0$ ) ou d'un défaut de masse ( $M \neq 0$ ) à l'interface sont équivalents.



#### IV.3.2.3. Raideur surfacique de l'interface $K$

L'approximation quasi-statique, valable pour des grandes longueurs d'ondes, permet à Baik et Thompson de relier les propriétés de diffusion de l'interface à sa réponse à un chargement statique. Ils font ainsi correspondre la raideur interfaciale  $K$  à la raideur statique de l'interface.

Une contrainte statique (traction ou compression)  $\Gamma$  appliquée à l'infini au système constitué des deux milieux séparés par l'interface imparfaite est considérée. Dans ce cas, la somme des déplacements relatifs de deux points éloignés l'un de l'autre, et sur des côtés opposés de part et d'autre de l'interface,  $u_T$ , peut être écrit comme [Bai84] :

$$u_T = u_P + u_I \quad (\text{IV.22})$$

avec  $u_P$  le déplacement qui aurait existé si l'interface avait été "parfaite" (sans aucune discontinuité), et  $u_I$  le déplacement supplémentaire dû à la déformation locale dans le voisinage de l'interface. La raideur de l'interface,  $K$ , est alors définie telle que :

$$K = -\frac{\Gamma}{u_I} \quad (\text{IV.23})$$

Elle peut être perçue comme la raideur du ressort distribué qui, s'il est utilisé pour joindre les deux demi-espaces solides, reproduirait le déplacement statique.  $K$  varie de zéro, quand la surface réelle de contact est nulle, à l'infini quand un contact complet est obtenu.

#### IV.3.2.4. Masse surfacique de l'interface $M$

Afin d'inclure correctement les effets inertiels du changement de densité dû aux inclusions ou aux pores à l'interface, la masse par unité d'aire,  $M$ , est donnée par [Bai84] :

$$M = \int_{-w/2}^{w/2} (\overline{\rho(x)} - \rho_0) dx \quad (\text{IV.24})$$

où  $w$  est l'épaisseur du milieu contenant les inclusions ou les pores,  $\rho_0$  est la masse volumique du matériau original, et  $\overline{\rho(x)}$  est la masse volumique effective, moyennée dans le plan  $y-z$ . Pour une interface constituée d'un réseau de fissures,  $M = 0$ . Pour des imperfections volumétriques telles que des pores ou des inclusions,  $M$  peut être positif ou négatif. La masse de la couche interfaciale ne peut être ignorée que si les poches de gaz sont très fines dans la direction normale à l'interface, ce qui n'est pas le cas des interfaces composites des échantillons expérimentaux.

## **IV.4. Modélisation de la transmission à une interface composite**

Du point de vue acoustique, une interface composite constitue un cas intermédiaire entre une interface rugueuse purement solide-liquide et un film de gaz séparant le solide du liquide. Ainsi, l'interaction de l'onde ultrasonore avec l'interface devient plus complexe et les coefficients de réflexion et transmission ne peuvent plus être calculés en utilisant les équations (IV.9) et (IV.10). Les poches de gaz distribuées entre les contacts purement solide-liquide diffusent l'onde incidente. Par conséquent, les champs acoustiques transmis et réfléchis sont le résultat d'interactions entre l'onde et ces diffuseurs. La nature de ces interactions est gouvernée par le rapport de la taille des diffuseurs sur la longueur d'onde ultrasonore dans le plan de l'interface.

C'est pourquoi, dans un premier temps, les différents domaines de diffusion seront introduits. Les trois modèles développés, dont le dernier est le plus concordant, seront ensuite définis. Ces modèles ne traitent que le cas du domaine de diffusion basse fréquence. Les résultats obtenus avec chaque modèle seront comparés à ceux de l'expérience en eau utilisant les échantillons épais.

### **IV.4.1. Les différents domaines de diffusion**

Si la poche de gaz est considérée comme un diffuseur tout-à-fait classique, lorsque l'onde ultrasonore incidente atteint l'interface composite, trois cas de figures peuvent se présenter.

Si la longueur d'onde de l'onde incidente est très inférieure à la taille des diffuseurs et à l'écartement entre les diffuseurs, l'onde "voit" deux milieux distincts, le solide entre les diffuseurs et le gaz des diffuseurs. Il s'agit du domaine de diffusion des ondes généralement appelé domaine géométrique.

Ce cas a été étudié expérimentalement mais aussi grâce à une simulation numérique par Lesueur [Les04] pour des échantillons comprenant des trous cylindriques de plusieurs millimètres de diamètres. Les résultats numériques et expérimentaux montrent que le coefficient de transmission de l'interface composite a tendance à suivre la loi du modèle surfacique de Lesueur. Ce modèle considère que les ondes sont totalement réfléchies dans les zones d'interface liquide-gaz, l'impédance acoustique de la phase gaz étant très faible devant les impédances acoustiques des phases liquide et solide, et qu'elles sont transmises en suivant la relation (IV.10) dans les zones d'interface solide-liquide. Le coefficient de transmission de

l'interface composite est ainsi égal au produit du coefficient de transmission de l'interface solide-liquide (donné par (IV.10)) par la fraction surfacique d'interface solide-liquide  $\tau$ .

Cependant ce modèle surestime le coefficient de transmission de l'interface composite par rapport aux résultats numériques et expérimentaux. Cet écart pourrait provenir du fait que la longueur d'onde n'est pas très inférieure au diamètre des trous et à l'écartement entre trous et que, par conséquent, ce cas se rapproche du domaine stochastique.

Si la longueur d'onde de l'onde incidente est comparable à la taille des diffuseurs et de l'écartement entre les diffuseurs, le domaine de diffusion est appelé domaine stochastique. Des phénomènes de diffusion complexes se produisent [Ros89] dans lesquels des résonances se créent entre les diffuseurs voisins. Dans ce domaine, la forme précise de chaque diffuseur peut affecter de manière significative le champ diffusé et par conséquent les proportions d'énergie réfléchie et transmise.

Si la longueur d'onde de l'onde incidente est très supérieure à la taille des diffuseurs et à l'écartement entre ces diffuseurs, le domaine de diffusion est alors généralement appelé le domaine de Rayleigh (ou domaine basse fréquence). Dans ce domaine, les proportions d'énergie transmise et réfléchie ne sont plus dépendantes de la forme exacte et de la taille de chaque diffuseur et la diffusion est faible [Dri96]. L'onde "voit" l'interface composite comme un milieu interfacial "effectif" (ou "équivalent"), c'est-à-dire une couche intermédiaire avec des propriétés effectives séparant le solide du liquide. Dans ce cas, il peut être envisagé de déterminer certaines de ces propriétés effectives telles que la masse volumique, la compressibilité, la vitesse du son, l'impédance acoustique ou encore une raideur interfaciale effective afin d'utiliser ensuite un modèle masse-ressort [Bai84].

Cette comparaison de la longueur d'onde à la taille caractéristique du diffuseur ne vaut que si le diffuseur est simplement diffractant, c'est-à-dire s'il ne possède pas de degrés de liberté internes. Elle peut être remise en question pour le cas de diffuseurs tels que les poches de gaz à cause du fait que la masse volumique du gaz est très petite devant celle du liquide et du solide. Leroy [Ler04] considère, par exemple, qu'une bulle d'air dans l'eau n'est pas en soi un objet très diffractant, mais que l'inclusion d'une quantité, même infime, d'air dans l'eau suffit à modifier drastiquement les propriétés acoustiques du milieu. En effet, la résonance fondamentale d'une bulle d'air dans l'eau se situe à une fréquence correspondant à des longueurs d'onde dans l'air et dans l'eau très grandes devant la taille de la bulle. Il en est de même pour les poches de gaz dans les trous cylindriques des échantillons expérimentaux (cf. tableau III.1). Ainsi, même si les fréquences d'excitation par rapport à la taille des poches de gaz correspondent au domaine de diffusion de Rayleigh, il est très possible que la diffusion

des ondes soit très accentuée par la résonance des poches de gaz. La diffusion sera d'autant plus grande que la fréquence d'excitation est proche de la fréquence de résonance des poches de gaz. Pour simplifier le problème mais en gardant bien à l'esprit les implications de cette remarque, l'hypothèse de régime basse fréquence est considérée pour tous les modèles théoriques présentés dans la suite.

#### IV.4.2. Données d'entrée des modèles

Dans les modèles qui suivent, les indices  $S$  font référence au solide c'est-à-dire au silicium, les indices  $L$  font référence au liquide c'est-à-dire à l'eau, les indices  $G$  font référence au gaz c'est-à-dire à l'air. Les trous cylindriques sont supposés remplis seulement par de l'air. Certaines valeurs des différentes propriétés de ces matériaux ainsi que les valeurs d'autres données ont été fournies au tableau IV.4 et au § III.3.2.3, les autres sont énumérées ici :

- Rapport de la chaleur spécifique à pression constante à celle à volume constant de l'air  $\gamma = 1,4$  pour le calcul de la compressibilité  $\chi_G$ ,
- Masse volumique de l'air à 20°C et à  $p_{atm}$  :  $\rho_G = 1,204 \text{ kg/m}^3$ ,
- Constantes de rigidité du silicium :  $C_{11} = C_{22} = C_{33} = 165,6 \text{ GPa}$  [Roy96],

A partir de (IV.10), le coefficient de transmission en pression dans le sens solide vers liquide pour l'échantillon de référence est donné par :

$$t_{pSL} = \frac{2Z_L}{Z_L + Z_S} \quad (\text{IV.25})$$

#### IV.4.3. Modèle avec impédance acoustique effective

La vitesse effective du son dans un milieu biphasique particulier, un liquide bulleux, peut être évaluée à partir d'un modèle très simple : la vitesse de Wood [Woo32]. Pour une fraction volumique  $\phi_G$  de gaz dans le milieu, la masse volumique et la compressibilité effectives du milieu sont considérées comme étant respectivement égales à la moyenne des masses volumiques et des fractions volumiques du liquide et du gaz pondérées par leur fraction volumique respective :  $\rho_{eff} = \phi_G \rho_G + (1 - \phi_G) \rho_L$  et  $\chi_{eff} = \phi_G \chi_G + (1 - \phi_G) \chi_L$ . La vitesse de Wood est alors définie comme étant la vitesse effective :

$$c_{eff} = \frac{1}{\sqrt{\rho_{eff} \chi_{eff}}} = ((\phi_G \rho_G + (1 - \phi_G) \rho_L)(\phi_G \chi_G + (1 - \phi_G) \chi_L))^{-1/2} \quad (\text{IV.26})$$

Cette expression n'est valable que pour des fréquences basses devant les fréquences de Minnaert (fréquence de résonance la plus basse) des bulles présentes dans le liquide. A partir de l'expression (IV.6), l'impédance acoustique effective d'un tel milieu est alors donnée par :

$$Z_{eff} = \rho_{eff} c_{eff} = \sqrt{\frac{\rho_{eff}}{\chi_{eff}}} . \quad (IV.27)$$

Il est clair que cette impédance acoustique effective va dépendre fortement des différences de compressibilité des deux phases.

La couche interfaciale composite peut être assimilée à un milieu biphasique solide-gaz très fin. Il est rappelé que, dans le cas d'une interface composite,  $\tau$  représente la fraction surfacique d'interface purement solide/liquide (pour l'échantillon de référence :  $\tau = 1$ ). En considérant que les hétérogénéités du milieu sont beaucoup plus petites que la longueur d'onde, il est alors tentant d'essayer d'appliquer l'expression (IV.27). L'impédance acoustique serait alors donnée par :

$$Z_{eff} = \sqrt{\frac{(1-\tau)\rho_G + \tau\rho_S}{(1-\tau)\chi_G + \tau\chi_S}} \quad (IV.28)$$

En introduisant cette expression dans (IV.13) et en considérant que l'épaisseur de cette couche interfaciale composite est égale à la profondeur  $h$  des crevasses, le coefficient de réflexion en pression de l'interface composite lorsque l'onde est incidente dans le solide est donné par :

$$r_{pSL}^{gh} = \frac{(Z_{eff} Z_L - Z_S Z_{eff}) \cos k_{eff} h - i(Z_{eff}^2 - Z_S Z_L) \sin k_{eff} h}{(Z_{eff} Z_L + Z_S Z_{eff}) \cos k_{eff} h - i(Z_{eff}^2 + Z_S Z_L) \sin k_{eff} h} \quad (IV.29)$$

où  $k_{eff} = \omega/c_{eff}$  avec  $c_{eff} = [(\tau\rho_S + (1-\tau)\rho_G)(\tau\chi_S + (1-\tau)\chi_G)]^{-1/2}$ ,  $\chi_S = 1/C_{11}$ , et  $\chi_G = 1/(p_L \kappa)$ . Le coefficient de transmission est alors obtenu à partir de la relation :

$$t_{pSL}^{gh} = 1 + r_{pSL}^{gh} . \quad (IV.30)$$

La courbe  $FTI_{tSL}(\tau)$ , obtenue à partir de ce modèle en utilisant (IV.1), où sont introduites les relations (IV.30) et (IV.29) pour l'échantillon gravé hydrophobe et (IV.25) pour l'échantillon de référence, est tracée à la figure IV.19 pour la fréquence 1 MHz. Cette courbe présente plusieurs pics qui sont dus aux résonances dans l'épaisseur de l'échantillon. Pour la fréquence de 5 MHz, la courbe (non tracée) présente beaucoup plus de pics. En plus de la présence des pics, il est observé une chute brutale de la  $FTI_t$  lorsque  $\tau$  devient inférieure à 1, et la  $FTI_t$  est aussi très faible entre les pics. Ce modèle ne prédit donc pas correctement l'évolution de la  $FTI_t$  en fonction de  $\tau$ .

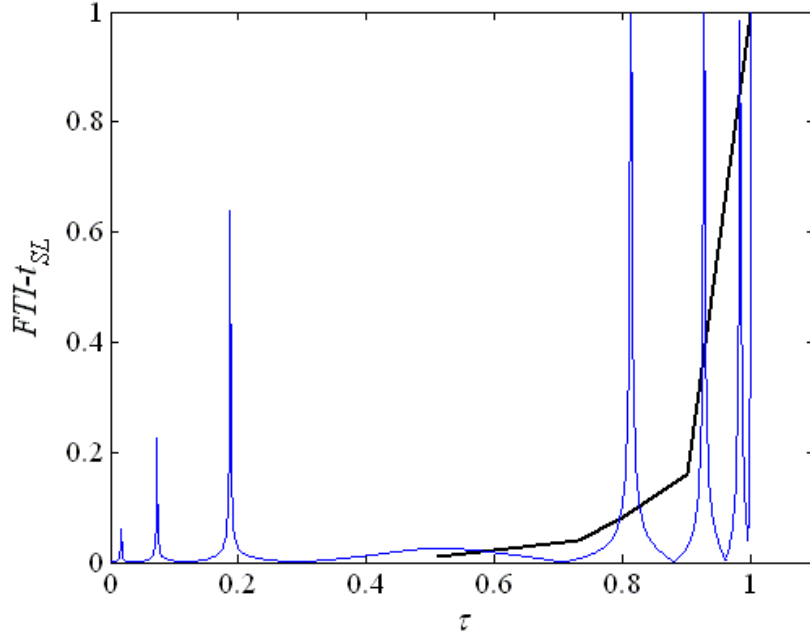


Figure IV.19 : En bleu : Courbe  $FTI_{t_{SL}}$  en fonction de  $\tau$  à 1 MHz, obtenue à partir du modèle basé sur l'impédance acoustique effective de la couche interfaciale composite. En noir : Courbe expérimentale  $FTI_{t_{SL}}$  en fonction de  $\tau$  à 1 MHz pour  $d = 30 \mu m$ .

Il faut remarquer que la couche interfaciale composite représente un milieu complexe borné par le solide d'un côté et le liquide de l'autre, et que les interactions avec l'un et l'autre sont différentes. Par conséquent, l'expression (IV.29) devrait s'appliquer plutôt pour un solide comportant des inclusions de gaz dans son volume. Par ailleurs, il est très probable que la vitesse de Wood et donc la relation (IV.29) ne soient pas valables pour des fréquences ultrasonores supérieures aux fréquences de résonance des poches de gaz (cf. tableau III.1 pour les poches de gaz dans les trous cylindriques).

#### IV.4.4. Modèle à ressort avec raideur d'une couche interfaciale effective

Il s'agit ici d'utiliser le modèle masse-ressort et de déterminer la raideur interfaciale  $K$  et la masse interfaciale  $M$  de l'interface composite en l'assimilant à une couche interfaciale caractérisée par une masse volumique et une compressibilité effectives. La compressibilité effective est donnée par :

$$\chi_{eff} = \phi_s \chi_s + (1 - \phi_s) \chi_G \quad (IV.31)$$

où  $\chi_G = 1/(p_L \kappa)$  et  $\chi_s = 1/E_s$  avec  $E_s$  le module de compressibilité du solide.

#### IV.4.4.1. Raideur interfaciale

Dwyer *et al.* [Dwy04] considère que, pour une couche interfaciale séparant deux milieux,  $K$  est définie telle que :

$$K = -\frac{dp}{dh} \quad (\text{IV.32})$$

où  $p$  est la pression appliquée et  $h$  est la distance entre les surfaces (en d'autres termes, l'épaisseur de la couche). Le module de compressibilité effectif de la couche est donné par :

$$E_{eff} = -\frac{dp}{dV/V} \quad (\text{IV.33})$$

Si la longueur d'onde acoustique est grande devant l'épaisseur de la couche, alors la couche est contrainte de se déformer seulement le long de son épaisseur. Alors  $dV/V = dh/h$ , et :

$$E_{eff} = -h \frac{dp}{dh} \quad (\text{IV.34})$$

En combinant les équations (IV.32) et (IV.34), il vient :

$$K = \frac{E_{eff}}{h} = \frac{1}{h\chi_{eff}} \quad (\text{IV.35})$$

En introduisant (IV.31) dans (IV.35), une expression de  $K$  en fonction des propriétés du solide et du gaz est obtenue :

$$K = \frac{1}{h(\tau/E_S + (1-\tau)\chi_G)} \quad (\text{IV.36})$$

#### IV.4.4.2. Masse interfaciale

La densité réelle  $\overline{\rho(x)}$  moyennée dans le plan  $y-z$  (cf. § IV.3.2.4) d'une couche interfaciale composite peut s'exprimer à partir des fractions surfaciques du solide  $\phi_S$ , et du gaz  $\phi_G$ , de masses volumiques respectives  $\rho_S$  et  $\rho_G$ , définie telle que :

$$\overline{\rho(x)} = \phi_S(x)\rho_S + \phi_G(x)\rho_G \quad (\text{IV.37})$$

Etant donnés la géométrie de la couche interfaciale et les matériaux en présence, dans le cas des échantillons expérimentaux immergés dans l'eau,  $\overline{\rho(x)}$  est donnée par :

$$\overline{\rho(x)} = \bar{\rho} = \tau\rho_S + (1-\tau)\rho_G \quad (\text{IV.38})$$

A partir de (IV.24) et (IV.38),  $M$  est donc donnée par :

$$M = \int_0^h (\overline{\rho(x)} - \rho_S) dx = h(\tau - 1)(\rho_S - \rho_G) \quad (\text{IV.39})$$

Cette masse surfacique sera donc négative pour tous les échantillons expérimentaux.

#### IV.4.4.3. Résultats

Les courbes  $FTI_{t_{SL}}(\tau)$  de ce modèle sont tracées à la figure IV.20 pour les fréquences 1 et 5 MHz sur une échelle de  $\tau$  variant de 0,95 à 1. Elles sont tracées en utilisant (IV.1) où sont introduites les expressions (IV.21) pour l'échantillon gravé hydrophobe et (IV.25) pour l'échantillon de référence. Dans (IV.21),  $K$  et  $M$  sont respectivement données par (IV.36) et (IV.39).

Les courbes comporte une portion de trait épais, pour laquelle  $|M\omega^2/4K| < 0,1$ , et une portion de trait fin qui commence lorsque  $|M\omega^2/4K| > 0,1$  et qui finit lorsque  $|M\omega^2/4K| = 1$ . Dans la région du trait épais, les effets de la résonance sont faibles tandis que dans la région du trait fin, Baik et Thompson [Bai84] font savoir que l'erreur du modèle masse-ressort peut devenir significative.

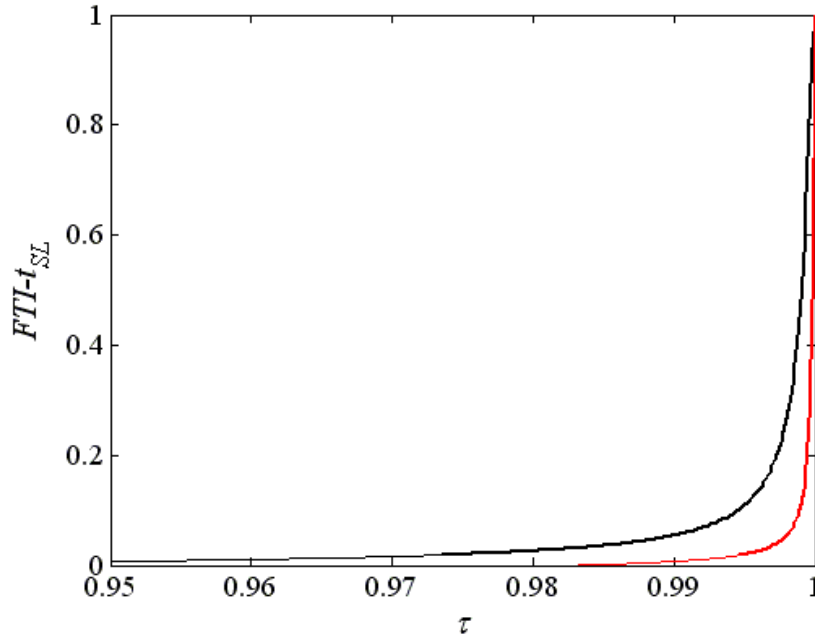


Figure IV.20 : Courbes  $FTI_{t_{SL}}$  en fonction de  $\tau$  à 1 MHz (noir) et à 5 MHz (rouge) obtenue à partir du modèle basé sur l'impédance acoustique effective de la couche interfaciale composite.

Il est observé une chute de la  $FTI_t$  très brutale dès que  $\tau$  devient inférieure à 1. Cette chute est beaucoup trop importante pour que ce modèle puisse prédire correctement



l'évolution réelle de la  $FTI_t$  en fonction de  $\tau$ . Par ailleurs, ce modèle prédit une transmission meilleure à 1 MHz qu'à 5 MHz alors que c'est l'inverse qui est observé expérimentalement (voir figure IV.14).

#### IV.4.5. Modèle masse-ressort avec raideur d'un ressort effectif

Ce dernier modèle est le plus élaboré des trois. Comme pour le second modèle, le modèle masse-ressort est utilisé. La seule différence avec le second modèle est la définition de sa raideur interfaciale.

Une approche plus robuste consiste à utiliser les raideurs indépendantes correspondant à la fraction surfacique du gaz et à la fraction surfacique du solide, et ensuite d'appliquer une pression qui agit de manière égale sur chaque fraction. Dans ce modèle, la raideur interfaciale correspond en fait à celle d'un ressort effectif qui est équivalent à deux ressorts : celui de la fraction surfacique du solide et celui de la fraction surfacique du gaz. La raideur de ce dernier est calculée à partir de la "raideur dynamique" de la poche de gaz. Cette "raideur dynamique" prend en compte la raideur statique de la poche de gaz ainsi qu'une "résistance inertielle" fonction de la fréquence d'excitation acoustique où intervient la masse de radiation.

Le système conceptuel qui est proposé dans cette étude est celui illustré à la figure IV.21. Suite à l'application d'une pression acoustique, assimilée à une contrainte statique, le déplacement  $u_I$ , tel que défini au § IV.3.2.3, qui peut être vu comme la variation d'épaisseur de la couche interfaciale composite, est tel que :

$$u_I = \phi_S u_S + \phi_G u_{PG} \quad (IV.40)$$

$u_{PG}$  est le déplacement du ménisque de chaque poche de gaz donné par (III.44) si  $f > f_{PG}$  pour des poches de gaz dans des trous cylindriques.  $u_S$  est le déplacement, ou plutôt la variation d'épaisseur de la fraction de solide contenue dans la couche interfaciale.  $u_S$  est donné par :

$$u_S = -\frac{p_A}{K_S} \quad (IV.41)$$

où  $K_S$  peut être calculé grâce à la relation :

$$K_S = \frac{E_S}{h}. \quad (IV.42)$$

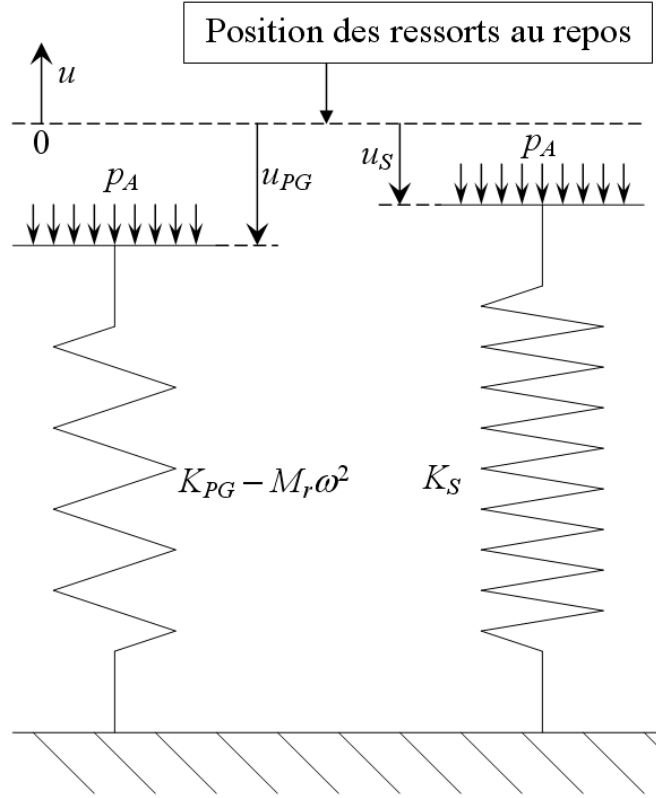


Figure IV.21 : Système conceptuel du ressort effectif équivalent à deux ressorts indépendants : celui de la fraction surfacique du solide et celui de la fraction surfacique du gaz.  $p_A$  est représenté positif sur le schéma alors que  $u_{PG}$  et  $u_S$  sont représentés négatifs.

En utilisant (III.44) et (IV.41), la relation (IV.40) devient :

$$u_I = \tau \left( -\frac{p_A}{K_S} \right) + (1 - \tau) \frac{p_A}{M_r \omega^2 - K_{PG}} \quad (\text{IV.43})$$

La raideur du ressort effectif  $K$  est forcément positive.  $K$  est donc égale à  $-p_A/u_I$  lorsque  $p_A$  et  $u_I$  sont de signes opposés, c'est-à-dire lorsque  $f < f_{PG}$ , et elle est égale à  $p_A/u_I$  lorsque  $p_A$  et  $u_I$  sont de mêmes signes, c'est-à-dire lorsque  $f > f_{PG}$ .  $K$  est ainsi donnée par :

$$K = \left| -\frac{p_A}{u_I} \right| = \left| \frac{K_S (M_r \omega^2 - K_{PG})}{\tau (M_r \omega^2 - K_{PG}) + (\tau - 1) K_S} \right| \quad (\text{IV.44})$$

Dans ce modèle, la masse interfaciale  $M$  est la même que celle utilisée dans le second modèle. Elle est donnée par l'expression (IV.39).

Les courbes  $FTI_{tSL}(\tau)$  du dernier modèle sont tracées à la figure IV.22 pour les fréquences 1 et 5 MHz et pour les trois valeurs de diamètres pour la fréquence 5 MHz. Ces courbes sont obtenues de la même façon que pour le second modèle sauf que la raideur interfaciale  $K$  est cette fois fournie par l'expression (IV.44). Comme pour le modèle

précédent, dans la région du trait épais, les effets de la résonance sont faibles tandis que dans la région du trait fin, l'erreur du modèle masse-ressort peut être significative.

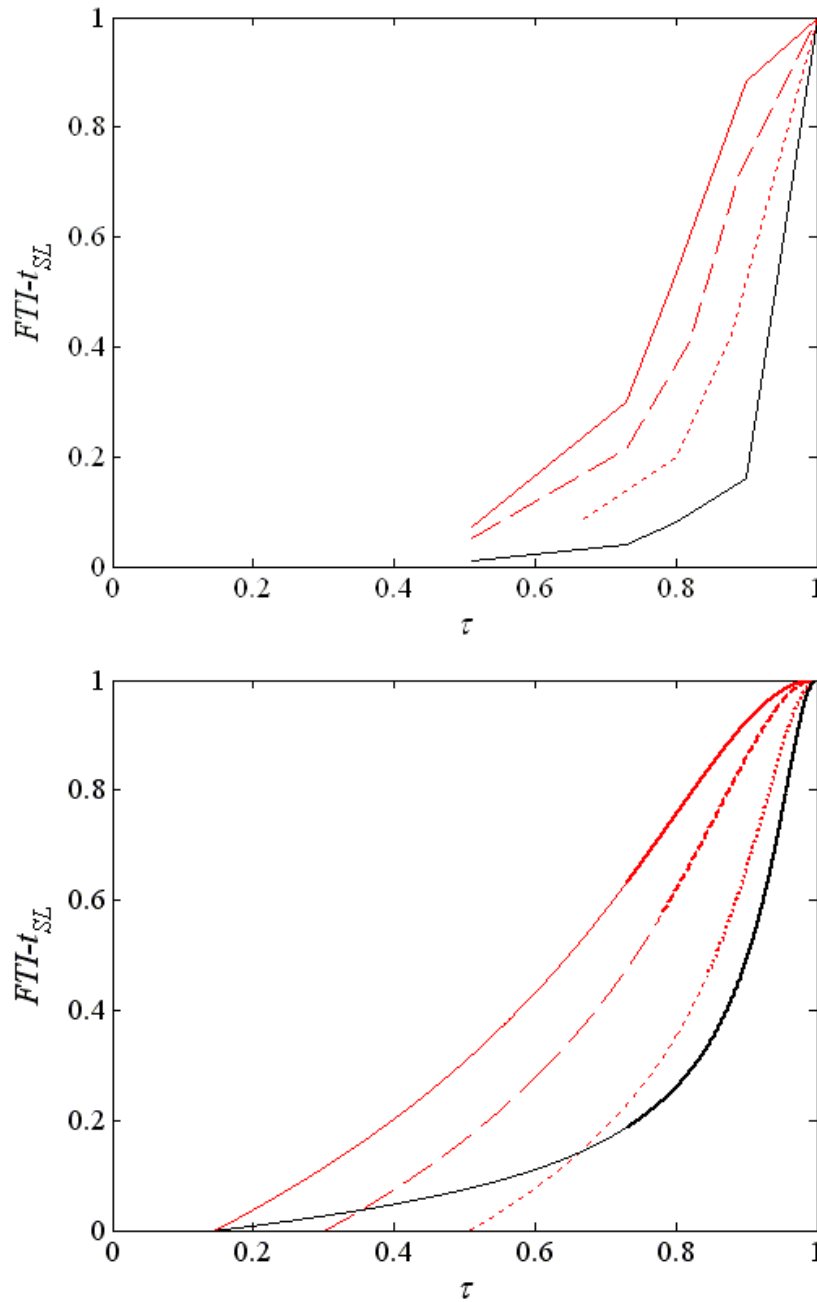


Figure IV.22 : Courbes  $F_{TI-t_{SL}}$  en fonction de  $\tau$  à 1 MHz (noir) et à 5 MHz (rouge) obtenue à partir de l'expérience (en haut) et du modèle (en bas). Trait continu :  $d = 30 \mu m$  ; trait tireté :  $d = 20 \mu m$  ; trait pointillé :  $d = 10 \mu m$ .

La figure IV.22 montre un accord satisfaisant entre le modèle et l'expérience. Les courbes issues du modèle indiquent que la chute de la  $F_{TI-t}$  lorsque  $\tau$  diminue est beaucoup moins prononcée que celle observée avec les précédents modèles, et elle se rapproche assez

bien de celle observée expérimentalement. De plus, la tendance de variation de la  $FTI_t$  en fonction du diamètre des trous et de la fréquence est en accord avec les résultats expérimentaux.

Ce modèle surestime la transmission des ultrasons. Cela peut venir du fait que les modèles masse-ressort de l'interface (modèle de Baik et Thompson : § IV.3.2) et de la poche de gaz (cf. § III.4) ne prennent pas en compte d'amortissement et donc négligent les pertes d'énergie dues aux effets dissipatifs de la viscosité de l'eau et de l'air. Par ailleurs, le modèle ne prend pas en compte non plus la diffusion acoustique due à la diffraction des ondes ultrasonores par les bords des trous. Il constitue cependant une base prometteuse en vue d'une amélioration de la description de la transmission des ultrasons à une interface composite.

## **IV.5. Conclusion**

Ce dernier chapitre a été dédié à l'étude de la transmission des ultrasons en incidence normale à une interface composite contrôlée. Une modélisation originale et une nouvelle expérience ultrasonore ont été réalisées afin de prédire et de mesurer le coefficient de transmission à l'interface entre la surface hydrophobe à rugosité contrôlée des échantillons et l'eau.

Grâce à l'analyse des résultats d'expériences précédentes, il a été remarqué qu'un bon couplage acoustique pouvait être obtenu avec un système non mouillant. Par ailleurs, il a été constaté que les poches de gaz de l'interface composite pouvaient être à l'origine du mauvais couplage acoustique. Le principal phénomène observé est la chute brutale de la transmission dès qu'un peu de gaz est présent à l'interface. Cette chute est beaucoup plus importante que la simple diminution provoquée par la surface réfléchissante que constituent les poches de gaz.

La nouvelle expérience ultrasonore en immersion dans l'eau a permis d'évaluer l'influence de la taille des poches de gaz et de leur fraction surfacique à l'interface mais aussi l'influence de la fréquence ultrasonore sur le coefficient de transmission. Il a été observé que la transmission, identique dans les deux sens de propagation, est d'autant meilleure, que la fréquence est élevée et que la fraction surfacique de gaz à l'interface est faible. De plus, elle s'améliore lorsque le domaine de diffusion se rapproche du domaine stochastique. Par conséquent, s'il est possible d'agir sur la rugosité du diaphragme des traducteurs, il faudra privilégier une rugosité pour laquelle, à fraction surfacique de gaz donnée, les poches de gaz et les espaces entre les poches de gaz sont grands.

La modélisation proposée a été déclinée en trois modèles. Le premier a été défini à partir d'une impédance acoustique effective de la couche interfaciale composite qui est introduite dans l'expression du coefficient de transmission d'un milieu multicouche. Le second et le troisième modèle sont basés sur le modèle masse-ressort qui a été beaucoup utilisé pour décrire la transmission/réflexion des ultrasons à une interface imparfaite entre deux solides. La raideur du ressort du second modèle correspond à la raideur de la couche interfaciale effective. La raideur du troisième est celle d'un ressort effectif équivalent à deux ressorts : celui de la fraction surfacique du solide et celui de la fraction surfacique du gaz. Les paramètres du premier et du second modèle sont la fréquence des ultrasons, la fraction surfacique des poches de gaz et leur profondeur. Le troisième modèle intègre en plus le diamètre des poches de gaz.

La comparaison des résultats des deux premiers modèles avec ceux de l'expérience montrent que l'évolution de la transmission en fonction des paramètres n'est pas correctement décrite par ces modèles. En revanche, le dernier modèle donne des résultats prometteurs. La chute de la transmission lorsque la fraction surfacique de gaz augmente est beaucoup moins prononcée que celle observée avec les deux premiers modèles, et elle se rapproche assez bien de celle observée expérimentalement. De plus, la tendance de variation de la transmission en fonction du diamètre des poches de gaz et de la fréquence est en accord avec les résultats expérimentaux.

Cependant, ce modèle surestime un peu la transmission des ultrasons. Une piste permettant de l'améliorer consisterait à prendre en compte la diffraction des ondes ultrasonores par la rugosité seule ainsi que la dissipation visqueuse sous forme d'amortissement dans les modèles masse-ressort.

## **Conclusion et perspectives**

---

L'objectif de ce travail était double. Il s'agissait tout d'abord de vérifier l'existence d'une interface composite entre l'acier inoxydable austénitique, matériau du diaphragme des TUSHT, et le sodium liquide à 180°C. Il s'agissait ensuite d'étudier son impact et les paramètres d'influence sur le couplage acoustique entre ces deux milieux.

Dans le premier chapitre, une étude bibliographique a été menée pour déterminer les mécanismes pouvant être à l'origine du piégeage des poches de gaz à l'interface entre le sodium liquide et l'acier austénitique. L'étude préalable du cas général du mouillage d'un solide par un liquide a montré que des poches de gaz peuvent être piégées si le système solide-liquide est non-mouillant et si la rugosité du solide comporte des changements abrupts de pentes. L'efficacité du dépôt d'or pour l'obtention d'un bon couplage acoustique des TUSHT a été expliquée en considérant le comportement de mouillage de l'or par le sodium liquide. Concernant le mouillage de l'acier inoxydable austénitique, l'identification des différents facteurs impliqués a démontré que la présence d'un film d'oxydes de chrome stable est à l'origine du non-mouillage permanent observé pour une température du sodium inférieure à environ 300°C. Pour réaliser des expérimentations en évitant les contraintes liées au sodium liquide, un système non-mouillant équivalent a été utilisé. Il s'agit du système silicium hydrophobe – eau. Le silicium a été choisi car il est possible de modéliser la géométrie de sa rugosité par des procédés spécifiques. Il a alors été possible de maîtriser la forme et la distribution des poches de gaz ainsi que la fraction surfacique de gaz à l'interface lorsque cette surface rugueuse contrôlée est mise en contact avec de l'eau. Plusieurs échantillons différents par la taille des poches de gaz et leur fraction surfacique ont été réalisés pour ce travail de thèse.

Le chapitre suivant a été consacré à l'analyse des conditions de stabilité de ces poches de gaz en régime quasi-statique. Le modèle de la crevasse a été utilisé. Celui-ci a permis tout d'abord de proposer une explication la dissolution des poches de gaz dans le cas du système acier inoxydable austénitique-sodium liquide à une température supérieure à 300°C. Il a contribué ensuite à interpréter certaines observations expérimentales faites avec un autre

métal liquide, le plomb-bismuth. Enfin, lorsqu'il a été appliqué aux rugosités particulières des échantillons utilisés, les conditions de pression et de saturation de l'eau pour lesquelles les poches de gaz sont stables ont pu être évaluées.

Le comportement des poches de gaz soumises à une variation de pression ultrasonore a été étudié dans le troisième chapitre. Le modèle de la crevasse a été à nouveau appliqué à la rugosité particulière des échantillons utilisés. Une nouvelle expression de la fréquence de résonance des poches de gaz piégées dans des trous cylindriques a été proposée à partir de la définition d'une raideur et d'une masse particulières. Les fréquences de résonance calculées à partir de cette expression pour les différentes tailles de poches de gaz engendrées avec les échantillons expérimentaux sont toutes inférieures aux fréquences des capteurs utilisés dans les expériences présentées. Par conséquent, les phénomènes inertiels ne peuvent plus être négligés, comme cela a été fait dans le modèle de la crevasse, et ils contribuent à résister à la variation de volume des poches de gaz. Par ailleurs, des observations, tirées de l'expérience originale OMICA, comportant un système de visualisation optique, ont indiqué que la pression acoustique générée par les traducteurs n'est pas suffisante pour engendrer une variation sensible du volume des poches de gaz. Ainsi, il a pu être validé que la très faible transmission des ultrasons aux interfaces composites contrôlées n'a pas pour origine une présumée augmentation de la fraction surfacique de gaz, voire une coalescence des poches de gaz, sous l'action des ultrasons.

Au dernier chapitre, les résultats d'expériences antérieures ont tout d'abord été présentés. Ils indiquent une chute brutale du coefficient de transmission avec la fraction surfacique de gaz. Il a été choisi de conforter ces résultats mais aussi d'évaluer l'influence de la taille des poches de gaz et celle de la fréquence ultrasonore. Pour cela, une nouvelle expérience ultrasonore en eau, puis une modélisation dans le domaine de Rayleigh, ont été mises au point afin de mesurer et de prédire le coefficient de transmission à une interface composite contrôlée. Les résultats de l'expérience ont montré que la transmission, identique dans les deux sens de propagation, est d'autant meilleure, que la fréquence est élevée et que la taille des poches de gaz est petite. Autrement dit, elle s'améliore lorsque le domaine de diffusion se rapproche du domaine stochastique. Concernant la modélisation, trois modèles différents ont été proposés. Le troisième modèle, qui est le plus abouti, s'appuie sur le modèle masse-ressort largement utilisé pour décrire la transmission/réflexion des ultrasons à une interface imparfaite entre deux solides. Sa raideur, qui a été définie de façon originale, correspond à celle d'un ressort effectif équivalent à deux ressorts : celui de la fraction surfacique du solide et celui de la fraction surfacique du gaz. Les résultats obtenus avec ces trois modèles ont été

comparés à ceux de l'expérience. Les deux premiers modèles ne prédisent pas correctement l'évolution du coefficient de transmission en fonction des paramètres. En revanche, le troisième modèle donne des résultats prometteurs même s'il surestime un peu la transmission des ultrasons.

En conclusion, au travers des résultats présentés tout au long de ce travail, l'hypothèse, selon laquelle l'interface composite peut être à l'origine du mauvais couplage acoustique à 180°C, a été vérifiée. Tout d'abord, il a été montré que le système acier inoxydable austénitique – sodium liquide était non-mouillant à 180°C et que la rugosité pouvait provoquer l'existence d'une interface composite. Ensuite, il a été montré qu'une interface composite, obtenue avec un système "équivalent", induisait une mauvaise transmission des ultrasons. De plus, corollairement, il a été vu qu'un bon couplage acoustique pouvait être obtenu avec un système non-mouillant pourvu que la surface solide soit suffisamment lisse pour éviter le piégeage de poches de gaz.

Le travail pluridisciplinaire présenté a ouvert de nombreuses perspectives. Certaines correspondent à des études à mener à moyen terme, d'autres sont typiquement des solutions techniques potentielles permettant de résoudre à court terme la problématique du couplage acoustique des traducteurs.

Il a ainsi été remarqué que, sous certaines conditions, l'hystérésis de l'angle de contact pouvait entraîner une pénétration irréversible du liquide dans les anfractuosités de la rugosité, c'est-à-dire une réduction de la fraction surfacique de gaz à l'interface. Ce processus pourrait être approfondi théoriquement et expérimentalement avec des rugosités contrôlées puis avec des rugosités aléatoires résultant d'un usinage mécanique.

L'analyse du comportement de la poche de gaz dans son régime "basse fréquence" apporte des éléments de prédiction quant au mouvement du ménisque qu'il serait intéressant de vérifier expérimentalement. En effet, un approfondissement de cette analyse pourrait permettre de la généraliser à des géométries de crevasse plus complexes se rapprochant des géométries caractéristiques d'une rugosité réelle et pour lesquelles le régime "basse fréquence" serait applicable.

Une perspective d'amélioration du modèle prédictif de la transmission des ultrasons à une interface composite contrôlée consisterait à prendre en compte la diffraction des ondes ultrasonores par la rugosité seule ainsi que la dissipation visqueuse sous forme d'amortissement dans les modèles masse-ressort.



Pour éviter le piégeage des poches de gaz, il a été proposé d'agir sur la rugosité ou encore de déposer sur la surface solide un revêtement qui serait facilement mouillé par le sodium. Concernant la rugosité, il faudra privilégier des traitements de la surface solide permettant de réduire les pentes des aspérités. En termes de revêtement, il pourrait être intéressant d'examiner la possibilité de remplacer l'or par un autre matériau. Dans cette optique, l'expérience LIQUIDUS en sodium qui sera menée très prochainement au CEA s'attachera tout d'abord à étudier la possibilité d'obtenir un bon couplage acoustique du diaphragme des TUSHT et des traducteurs piézocomposites sans avoir obtenu le mouillage. Pour cela, des échantillons dont la rugosité est très faible ( $R_a \approx 0,01 \mu\text{m}$ ) seront utilisés. Cette expérience permettra aussi d'étudier par la suite l'influence de la température du sodium, de la teneur en oxygène du sodium, de l'épaisseur du film d'oxydes et de tester différents revêtements de surface.

Il peut aussi être envisagé d'éliminer le gaz ou de réduire sa fraction surfacique à l'interface. Cela pourrait être réalisé grâce à un chauffage localisé, à partir d'un dispositif intégré ou non au traducteur, du diaphragme du traducteur juste avant son immersion (préchauffage en argon) ou bien après. L'insonification de l'interface composite par des ultrasons de forte puissance pourrait aussi être expérimentée pour tenter de montrer qu'un "dégazage acoustique", c'est-à-dire à distance, de l'interface est possible. Enfin, sous réserve d'un approfondissement théorique et d'une validation expérimentale, il serait intéressant de mettre à profit l'effet de la pression hydrostatique. Par exemple, avant de faire fonctionner le TUSHT, celui-ci pourrait être immergé, pendant une durée à évaluer, à la profondeur la plus grande possible puis remonté à sa profondeur d'utilisation.

L'inspection ultrasonore des structures internes d'un réacteur refroidi par du sodium liquide avec capteur immergé dans le sodium est une voie prometteuse. Les travaux de cette thèse n'ont pas mis en évidence de verrou technologique. Toutefois, la mise au point de dispositifs industriels d'inspection robustes et fiables nécessitera dans les prochaines années un effort notable de R&D technologique.

---

## Bibliographie

---

- [Add56] C.C. Addison *et al.*, J. Chem. Soc, p. 1454., 1956.
- [Add62] C.C. Addison *et al.*, J. Chem. Soc, p. 2699., 1962.
- [Add65] C.C. Addison and E. Iberson., J. Chem. Soc., p. 1437, 1965.
- [Add68] C.C. Addison, E. Iberson, R.J. Pulham, Soc. Chem. Ind. Monograph, No. 28, 246, 1968.
- [Add84] C.C. Addison, *The chemistry of the liquid alkali metals*, John Wiley & Sons Ltd., 1984.
- [Alc94] B.B. Alchagirov and Kh.B. Khokonov, *Wettability of Solid Surfaces by Melts of Alkali Metals and Their Alloys: Experiment, High Temperature*, Vol. 32, No. 5, p. 707-733, 1994.
- [Ang85] Y.C. Angel, J.D. Achenbach, *Reflection and transmission of elastic waves by a periodic array of cracks*, J Appl Mech, 52, 33-41 (1985).
- [Apf70] R.E. Apfel, *The role of impurities in cavitation-threshold determination*, J. Acoust Soc Am, 48, 1179-1186, 1970.
- [Atc89] A.A. Atchley et A. Prosperetti, *The crevice model of bubble nucleation*, J. Acoust. Soc. Am., 86, 3, 1065-1084, 1989.
- [Bai84] J.-M. Baik, R.B. Thompson, *Ultrasonic scattering from imperfect interfaces: a quasi-static model*, J Nondestr Eval, 4:177-96, 1984.
- [Bal02] A. Baltazar, S.I. Rokhlin, and C. Pecorari, *On the relationship between ultrasonic and micromechanical properties of contacting rough surfaces*, J. Mech. Phys. Solids, 50, 1397-1416, 2002.
- [Bar69] M. Barlow and P.J. Planting, Zeit. für Metall., 60, 719, 1969.
- [Bar75] M.G. Barker and A.J. Hooper, J. Chem. Soc. (Dalton), 2487, 1975.
- [Bar76] M.G. Barker and A.J. Hooper, J. Chem. Soc. (Dalton), 1093, 1976.
- [Ber93] J.-L. Berton, *Propriétés acoustiques de sodium*, Note Technique CEA DER/SSAE/LSMI 93/058, 1993.

- [Ber08] J.-L. Berton, *Spécification d'un traducteur plan à face avant en résine et d'un montage pour essai en sodium*, Note Technique CEA DTN/STPA/LTCG 08/011, 2008.
- [Bez04] A.V. Beznosov, M.A. Kamnev, S.S. Pinaev, V.S. Lavrenov, *Ultrasonic studies of the characteristics of the structural material-heavy liquid metal coolant boundary layer*, Atomic Energy, Vol. 97, 6, p. 858-861, 2004.
- [Bic00] J. Bico, Thèse de Doctorat, *Mécanismes d'imprégnations : Surfaces Texturées, Bigouttes, Poreux*, Université de Paris VI, 2000.
- [Bic02] J.Bico, U.Thiele, D.Quéré, *Wetting of textured surfaces*, Colloid & Surfaces, 206, 41, 2002.
- [Bou24] H. Bouasse, *Capillarité et phénomènes superficiels*, Delagrave, Paris, 1924.
- [Bra61] D.H. Bradhurst and A.S. Buchanan, Austral. J. Chem., 14, 397, 1961.
- [Bre60] L. M. Brekhovskikh, *Waves in Layered Media*, p. 56-61, Academic P., 1960.
- [Bre95] C.E. Brennen, *Cavitation and bubble dynamics*, Oxford University Press 1995.
- [Bre05a] N. Bremond, M. Arora, C.-D. Ohl, and D. Lohse, *Cavitating bubbles on patterned surfaces*, Physics of fluids, 17, 091111, 2005.
- [Bre05b] N. Bremond, M. Arora, C.-D. Ohl, and D. Lohse, *Cavitation on surfaces*, J. Phys.: Condens. Matter, 17, S3603–S3608, 2005.
- [Bre06a] N. Bremond, M. Arora, C.-D. Ohl, and D. Lohse, *Controlled Multibubble Surface Cavitation*, PRL 96, 224501, 2006.
- [Bre06b] N. Bremond, M. Arora, S.M. Dammer, and D. Lohse, *Interaction of cavitation bubbles on a wall*, Physics of fluids, 18, 121505, 2006.
- [Bro03] C.J. Brotherhood, B.W. Drinkwater, S. Dixon, *The detectability of kissing bonds in adhesive joints using ultrasonic techniques*, Ultras., 41, 521–9, 2003.
- [Brz94] Brzoska J. B. *et al.*, *Silicization of solid substrates: a step toward reproductibility*, Langmuir, Vol. 10, p 4367-4373, 1994.
- [Cas44] A.B.D. Cassie, S. Baxter, *Wettability of porous surfaces*, Trans. Faraday Soc., Vol. 40, p 546-551, 1944.
- [Cha92] E. Charlaix, H. Gayvallet, *Dynamics of a harmonically driven fluid interface in a capillary*, Journal de Physique II, Vol. 2, 11, p. 2025-2038, 1992.
- [Cha03] J.F. Chaix, *Caractérisation non destructive de l'endommagement thermique de bétons. Apport de la multidiffusion ultrasonore*, Thèse de Doctorat, Université de la Méditerranée, 2003.

- [Cha06a] D. Chatain, C. Lesueur, J.-P. Baland, *Wetting of Pb on Oxidized Micropatterned Si Wafers*, Langmuir, Vol. 22, No. 9, 4230-4236, 2006.
- [Cha06b] M.A. Chappell, S.J. Payne, *A physiological model of gas pockets in crevices and their behavior under compression*, Respiratory Physiology & Neurobiology, 152, 100–114, 2006.
- [Cha06c] M.A. Chappell, S.J. Payne, *A physiological model of the release of gas bubbles from crevices under decompression*, Respiratory Physiology & Neurobiology, 153, 166–180, 2006.
- [Cha06d] M.A. Chappell, S.J. Payne, *A physiological model of the interaction between tissue bubbles and the formation of blood-borne bubbles under decompression*, Phys. Med. Biol., 51, 2321–2338, 2006.
- [Cha07] M.A. Chappell, S.J. Payne, The effect of cavity geometry on the nucleation of bubbles from cavities, J. Acoust. Soc. Am. 121, 2, 2007.
- [Che99] J. Chen *et al.*, *Mechanical properties of 304L stainless steel irradiated with 800 MeV protons*, Journal of Nuclear Materials 275, 115-118, (1999).
- [Cou03] J.-L. Courouau, *Impuretés et procédés de purification des systèmes plomb-bismuth*, Note Technique CEA STR/LCEP 03/001, 2003.
- [Cou07] J.L. Courouau et F. Balbaud-Célérier, Réacteur rapide sodium : corrosion en milieu sodium - bibliographie, Rapport Technique CEA DPC/SCCME 07/757-A, 2007.
- [Cru79] L.A. Crum, *Tensile strength in water*, Nature, 278, 148-149, 1979.
- [DeG05] P.G. De Gennes, F. Brochard-Wyart, D. Quéré, *Gouttes, bulles, perles, et ondes*, Collection Echelles, Belin, 2005.
- [DeJ90a] De Jonghe V., Chatain D., *Wettability of real surfaces in liquid metal/monocrystalline alumina and contact angle hysteresis*, Interfaces in New Materials, Eds P. Grange, B. Delmon, Elsevier Applied Science, London UK, p. 210-228, 1990.
- [DeJ90b] De Jonghe V., Chatain D., Rivollet I., Eustathopoulos N., *Contact angle hysteresis due to roughness in four metal / sapphire systems*, J. Chim. Phys, vol 87, p. 1623-1645, 1990.
- [DeJ93] V. De Jonghe, Thèse de Doctorat, INP Grenoble, 1993.
- [Del72] V.A. Del Grosso and C.W. Mader, *Speed of sound in pure water*, J. Acoust. Soc. Amer., Vol. 52, no. 5, p. 1442–1446, 1972.
- [Dep85] : Y. Depierre, C. Latgé, *Eléments de réponse à la question d'actualité n° 15 – SPX1. « Niveau de température optimal vis à vis du mouillage des structures et de la purification du sodium primaire »*, Note Technique CEA STRA/LPCM/85/65, 1985.

- [Des07] O. Descombin, F. Baqué, *Surveillance et réparation des RNR sodium : retour d'expérience, analyse et améliorations pour le futur*, Note Technique CEA, DTN/STPA/LTTS 07/079, 2007.
- [Des08] O. Descombin, K. Paumel, *Programme général des essais Liquidus Sodium*, Note Technique CEA DTN/STPA/LTTS 08/041, 2008.
- [Det64] R.H. Dettre and R.E. Johnson, *Contact angle hysteresis – contact angle measurements on rough surfaces*, in *“Contact Angle, Wettability and Adhesion”*, Advances in Chemistry Series, No. 43, p. 136-135, 1964.
- [Dom99] C. Dominjon et O. Alberti, *Contrôle non destructif sous sodium : résultats des essais*, Note Technique CEA DER/SSAE/LSMR 99/039, 1999.
- [Dri96] B.W. Drinkwater, R.S. Dwyer Joyce, P. Cawley, *A study of the interaction between ultrasound and a partially contacting solid–solid interface*, Proc R Soc Lond Ser A: Math Phys Eng Sci; 452,1955, 2613–28, 1996.
- [Duc74] P. Ducret, *Synthèse des essais comparés de transducteurs haute température*, Note Technique CEA LEIS 74/35, 1974.
- [Duc81] P. Ducret et J. Risbourg, *Synthèse des essais de mouillage réalisés à partir des TUSHT*, Note Technique CEA DRNR/STRS/LEIS 80/30, 1980.
- [Duc88] P. Ducret, *Synthèse des essais acoustiques de mouillage effectués au CEA – Proposition de programme de R et D dans le cadre communautaire*, Note Technique CEA DRP/SSAE/LSMI 88/304, 1988.
- [Dwy01] R.S. Dwyer-Joyce, B.W. Drinkwater, A.M. Quinn, *The Use of Ultrasound in the Investigation of Rough Surface Interfaces*, Journal of Tribology, Vol. 123, 9, 2001.
- [Dwy04] R.S. Dwyer-Joyce, T. Reddyhoff, B.W. Drinkwater, *Operating Limits for Acoustic Measurement of Rolling Bearing Oil Film Thickness*, Tribology Transactions, 47, 366-375, 2004.
- [Ext04] C.W. Extrand, *Criteria for Ultralyophobic Surfaces*, Langmuir, 20, 5013-5018, 2004.
- [Gal83] J.P. Gallagher and R.H.S. Winterton, *Effect of pressure on boiling nucleation*, J. Phys. D: Appl. Phys., 16, L57-L61, 1983.
- [Gal85] J.P. Gallagher and R.H.S. Winterton, *Confirmation of the pressure history theory of boiling nucleation*, J. Phys. D: Appl. Phys, 18, 843-859, 1985.
- [Goo52] R.J Good, *A thermodynamic derivation of Wenzel's modification of Young's equation for contact angles; together with a theory of hysteresis*, J. Amer. Chem. Soc, vol 74, p. 5041-5042, 1952.
- [Gul52] E.A. Gulbransen and K.F. Andrew, J. Electrochem. Soc., 99, 402, 1952.

- [Guy01] E. Guyon, J.-P. Hulin, L. Petit, *Hydrodynamique Physique*, Editions CNRS, Paris, 2001.
- [Hai80] N. F. Haines, *The theory of sound transmission and reflection at contacting surfaces*, CEGB Berkeley Nuclear Laboratories, Report RD/B/N4744, 1980.
- [Har44] E.N. Harvey *et al.*, *Bubble formation in animals*, J. Cellular Comp. Physiol. 24, 1-34, 1944.
- [Hit81] S.J. Hitchcock, N.T. Carroll, M.G. Nicholas, *Some effects of substrate roughness on wettability*, J. Mater. Sci., 16, 3, 714-732, 1981.
- [Hod73] E.N. Hodkin, D.A. Mortimer, M.G. Nicholas, *The wetting of some ferrous materials by sodium*, Proceedings of the International Conference on Liquid Alkali Metals, 167-70, 1973.
- [Hol73a] P.K. Holland and R.H.S. Winterton, *Nucleation of sodium boiling from surface cavities containing gas*, Int. J. Heat Mass Transfer, 16, 1453-8, 1973.
- [Hol73b] P.K. Holland and R.H.S. Winterton, *The radii of surface nucleation sites which initiate sodium boiling*, Nuclear engineering and design, 24, 388-392, 1973.
- [Hod74] E.N. Hodkin, *Correlation of the wetting behaviour of sodium on Nimonic PE16 with the surface O/Cr ratio determined by Auger spectroscopy*, Journal of Nuclear Materials, 52, 2, 131-41, 1974.
- [Hod76] E. N. Hodkin, M.G. Nicholas, *The wetting of cladding materials and other materials and alloys by sodium*, AERE – R 7406, 1976
- [Joh64] R. E. Johnson, Jun. and R. H. Dettre, *Contact angle hysteresis – study of an idealized rough surface*, in “Contact Angle, Wettability and Adhesion”, Advances in Chemistry Series, No. 43, p. 112-135, 1964.
- [Joh69] R.E. Johnson, and R. Dettre, *Wettability and Contact Angles*, in Surface and Colloid Science, Matijevic, E. (ed.), Vol. 2, p. 82, Wiley, 1969.
- [Jon99] S.F. Jones, G.M. Evans, K.P. Galvin, *Bubble nucleation from gas cavities - a review*, Adv. Colloid Interface Sci. 80, 27-50, 1999.
- [Jou65] D.O. Jourdan and J.E. Lane, Aust. J. Chem., Vol. 18, p. 1711, 1965.
- [Jou66] D.O. Jourdan and J.E. Lane, Aust. J. Chem., Vol. 19, no. 7, p. 1093, 1966.
- [Jou67] D.O. Jourdan and J.E. Lane, *The Alkali Metals*, Proc. Int. Symp., Chem. Soc. Spec. Publ., no. 22, p. 147, 1967.
- [Ken71] K. Kendall, D. Tabor, *Ultrasonic study of area of contact between stationary and sliding surfaces*, Proc. Roy. Soc. London, Vol. 323, 1554, p. 321, 1971.

- [Lam95] S.D. Lambade, G.G. Sahasrabudhe, S. Rajagopalan, *Temperature dependence of acoustic attenuation in silicon*, Phys. Rev. B, Vol. 51, No 22, 1995.
- [Lav98] A.I. Lavrentyev, A. Baltazar, and S.I. Rokhlin, *Ultrasonic spectroscopy of two parallel imperfect interfaces*, Rev. Prog. Quant. Nondestr. Eval., 17, 1379–1386, 1998.
- [LeB00] N. Le Bozec, *Réaction de réduction de l'oxygène sur les aciers inoxydables en eau de mer naturelle. Influence du biofilm sur les processus de corrosion*, Thèse, Université de Bretagne Occidentale, 2000.
- [Lei94] T.G.Leighton, *The Acoustic Bubble*, Academic Press, 1994.
- [Lei95] T.G.Leighton, P.R. White, M.A. Marsden, *Applications of one-dimensional bubbles to lithotripsy, and to diver response to low frequency sound*, Acta Acustica, Vol. 3, 6, p. 517-529, 1995.
- [Ler04] V. Leroy, Thèse de Doctorat, *Bulles d'air dans l'eau : couplage d'oscillateurs harmoniques et excitation paramétrique*, Université Paris 7, 2004.
- [Les02] C. Lesueur, D. Chatain, C. Bergman, P. Gas, F. Baqué, *Analysis of the stability of native oxide films at liquid lead/metal interfaces*, Journal de Physique IV, Vol. 12, PR8, 155-162, 2002.
- [Les04] C. Lesueur, Thèse de Doctorat, *Contribution à l'étude de la propagation des ultrasons à une interface liquide-solide composite*, Université Aix-Marseille III, 2004.
- [Lhu79] C. Lhuillier, *Etalonnage de transducteurs acoustiques haute température, en sodium à 550°C, par la méthode de réciprocité*, Note technique CEA LEIS 79/06, 1979.
- [Lin81] T. B. Lindemer, T. M. Besmann, and C. E. Johnson, J. Nucl. Mater., 100, 178-226, 1981.
- [Liv55] D.J. Livey and P. Murray, Plansee Proc., 1955.
- [Lon67] B. Longson, A.W. Thorley, *The wetting behaviour of some alloys based on iron, nickel, and chromium in liquid sodium*, The Alkali Metals, Proc. Int. Symp., Chem. Soc. Spec. Publ., no. 22, p. 153-66, 1967.
- [Lon73] B. Longson, J. Prescott, *Some experiment on the wetting of stainless steel, nickel and iron in liquid sodium*, Proceedings of the International Conference on Liquid Alkali Metals, 171-6, 1973.
- [Lut88] S.D. Lubetkin, M. Blackwell, *The nucleation of bubbles in supersaturated solutions*, J. Colloid Interf. Sci., 26, 610, 1988.
- [Mar92] F.J. Margetan, R.B. Thompson, J.H. Rose, and T.A. Gray, *The interaction of ultrasound with imperfect interfaces : Experimental studies of model structures*, J. Nondestruct. Eval. 11, 109–126, 1992.

- [Moy05] J. Moysan, C. Lesueur, *Etude de l'hypothèse de coalescence des poches de phase vapeur à l'interface composite pour des rugosités modèles*, Université de la Méditerranée, 2005.
- [Pau06a] K. Paumel, *Présentation des essais ultrasonores en eau OMICA*, Note Technique CEA DTN/STPA/LTTS 06/035, 2006.
- [Pau06b] K. Paumel, *Procédure des essais ultrasonores en eau OMICA*, Note Technique CEA DTN/STPA/LTTS 06/036, 2006.
- [Pau07a] K. Paumel, *Compte-rendu des essais ultrasonores en eau OMICA*, Note Technique CEA DTN/STPA/LTTS 07/028, 2007.
- [Pau07b] K. Paumel, J. Moysan, M. Autric, C. Gueudré, G. Corneloup, F. Baqué, *Experimental study on the ultrasound-induced behaviour of gas pockets entrapped at a solid/liquid interface*, IVth NDT in PROGRESS, Prague, 2007.
- [Pia92] T.P. Pialucha, *The reflexion coefficient from interface layers in NDT of adhesive joints*, Ph.D. thesis, Imperial College, University of London, 1992.
- [Pie91] A.D. Pierce, *Acoustics. An introduction to its principles and applications*, Acoustical Society of America, 1991.
- [Qui02] A.M. Quinn, B.W. Drinkwater, R.S. Dwyer-Joyce, *The measurement of contact pressure in machine elements using ultrasound*, *Ultrasonics*, 39, 495–502, 2002.
- [Rab71] Rabinowicz, *Friction and wear materials*, John Wiley New York, p. 71, 1965.
- [Raj95] S. Rajendran Pillai, H.S. Khatak, J.B. Gnanmoorthy, *Formation of  $\text{NaCrO}_2$  in sodium systems of fast reactors and its consequence on the carbon potential*, *Journal of Nuclear Materials* 224, 17-24, 1995.
- [Riv86] I. Rivollet, Thèse de Doctorat, INP Grenoble, 1993.
- [Rod96] G. Rodriguez et J. Desreumaux, *Physico-chimie du sodium*, Rapport Technique, CEA STML/LEPE 96/090.
- [Rok91] S.I. Rokhlin and Y.J. Wang, *Analysis of ultrasonic wave interaction with imperfect interface between solids*, *Rev. Prog. Quant. Nondestr. Eval.*, 104, 185–192, 1991.
- [Ros89] J.H. Rose, *Ultrasonic reflectivity of diffusion bonds*, *Review of progress in quantitative NDE*, Vol. 8B, p. 1925-1931, 1989.
- [Rou75] D. Rousseau et S. Riggi, *Le mouillage des matériaux par le sodium liquide*, Note Technique CEA SDER 75/357, 1975.
- [Roy96] D. Royer, E. Dieulesaint, *Ondes élastiques dans les solides - propagation libre et guidée*, Editions Masson, 1996.



- [Rup04] F. Rupp, L. Scheideler, D. Rehbein, D. Axmann, J. Geis-Gerstorfer, *Roughness induced dynamic changes of wettability of acid etched titanium implant modifications*, Biomaterials, vol 25, p. 1429-1438, 2004.
- [Sem99] S. Semal, M. Voue, M.J. de Ruitjer, J. Dehuit, J. de Coninck, *Dynamics of spontaneous spreading on heterogeneous surfaces in a partial wetting regime*, J Phys Chem B, 103, 4854–61, 1999.
- [Shu48] R. Shuttleworth, G.L.J. Bailey, *The spreading of a liquid over a rough solid*, Discussion Faraday Soc., vol 3, p. 16-22, 1948.
- [Smi71] A.A. Smirnov, *Measurements of the Work of Adhesion of Alkali Metals*, Cand. Sci. (Tech.) Dissertation, MIFI (Moscow Inst. Of Engineering Physics), p. 32, 1971.
- [Stra59] M. Strasberg, *Onset of ultrasonic cavitation in tap water*, J. Acoust. Soc. Am., 31, 163-176, 1959.
- [Tat73] H.G. Tattersall, *The ultrasonic pulse-echo technique as applied to adhesion testing*, J. appl. Phys., D6, 819-832, 1973.
- [Tho05] R. Thomas, B.W. Drinkwater, and D. Liaptsis, *The reflection of ultrasound from partially contacting rough surfaces*, J. Acoust. Soc. Am. 117, 2, 2005.
- [Tik86] P. Tikuisis, *Modeling the observations of in vivo bubble formation with hydrophobic crevices*, Undersea Biomed. Res. 13, 165–180, 1986.
- [Tre87] D.H. Trevena, *Cavitation and Tension in Liquids*, Hilger, Bristol, 1987.
- [Vui76] P. Vuillerme, *Le mouillage des métaux par le sodium*, Note Technique CEA DRNR/STRS/SDER 76/419, 1976.
- [Wee73] J.R. Weeks and H.S. Isaacs, Adv. Corrosion Sci. Technol., 3, p. 1, 1973.
- [Wen36] R.N. Wenzel, *Resistance of solid surfaces to wetting by water*, Ind. Eng. Chem., vol 28, p 988-994, 1936.
- [Win77] R.H.S. Winterton, *Nucleation of boiling and cavitation*, J. Phys. D, 10, 2041-56, 1977.
- [Woo32] A.B. Wood. *A Textbook of sound*. Bell, London, 1932.
- [Wu73] P.C.S. Wu et P. Chiotti, *Reactions of Fe-Cr-Ni alloys with oxygen containing sodium*, Transaction A. N. S, vol 17, 161-162, 1973.
- [You82] D.E. Yount, *On the evolution, generation, and regeneration of gas cavitation nuclei*, J. Acoust. Soc. Am., 71, 1473, 1982.
- [You84] D.E. Yount, *A microscopic investigation of bubble formation nuclei*, J. Acoust. Soc. Am., 76, 1511, 1984.

## Annexe 1 : Loi de Laplace

---

Cette loi est à la base de tout problème d'interface entre deux fluides. Elle est ici énoncée de façon très brève [DeG05].

L'équilibre mécanique des interfaces courbées n'est possible qu'à condition qu'il y ait un saut de pression de part et d'autre de l'interface. La tension superficielle est à l'origine de la surpression à l'intérieur des gouttes et des bulles. Cette surpression est évaluée ici pour une sphère et pour une surface courbe quelconque.

Le cas d'une bulle d'air dans l'eau (Fig. A1.1) est tout d'abord considéré. Pour minimiser son énergie superficielle, la bulle est sphérique, de rayon  $R$ . La méthode dite "des déplacements virtuels", est ici utilisée. Si l'interface air – eau est déplacée de  $dR$ , le travail des forces de pression et capillaires s'exerçant sur l'interface s'écrit :

$$\delta W = -p_{\text{int}}dV - p_{\text{ext}}dV + \gamma_{LV}dA \quad (\text{A1.1})$$

où  $dV = 4\pi R^2dR$  et  $dA = 8\pi R dR$  sont respectivement l'augmentation de volume et de surface de la bulle.  $p_{\text{int}}$  et  $p_{\text{ext}}$  sont les pressions à l'intérieur de la bulle et à l'extérieur. La condition d'équilibre mécanique s'écrit  $\delta W = 0$ , c'est-à-dire :

$$\Delta p = p_{\text{int}} - p_{\text{ext}} = \frac{2\gamma_{LV}}{R} \quad (\text{A1.2})$$

La pression  $\Delta p$  est donc d'autant plus grande que la bulle est petite.

Pour une surface régulière, une courbure est associée à chacun de ses points. La courbure totale peut se décomposer en deux courbures principales pour lesquelles  $R_1$  et  $R_2$  représentent les rayons de courbure principaux en un point de la surface.

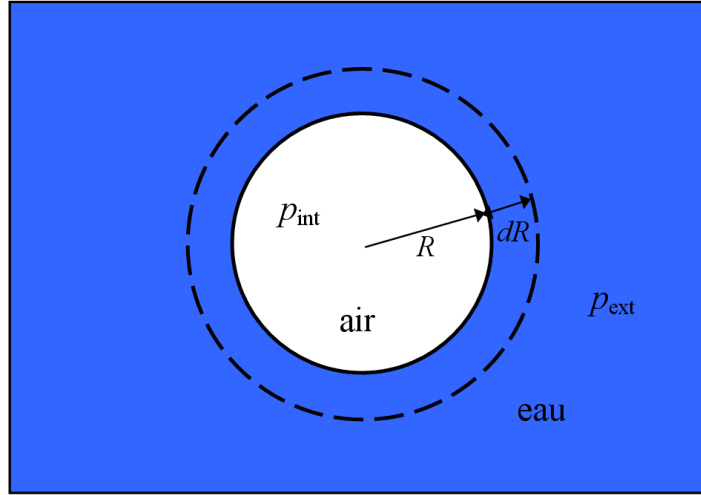


Figure A1.1 : Schéma d'une bulle d'air dans de l'eau avec le déplacement virtuel de l'interface air – eau en pointillé.

Le théorème de Laplace (1805) s'énonce comme suit :

L'accroissement de pression hydrostatique  $\Delta p$  qui se produit quand on traverse la surface de séparation de deux fluides, est égal au produit de l'énergie de surface  $\gamma_{LV}$  par la courbure de la

surface  $C = \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2}$  :

$$\Delta p = \gamma_{LV} \left( \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) = \gamma_{LV} C \quad (\text{A1.3})$$

La surface d'une sphère de rayon  $R$  est doublement courbée (selon ses parallèles et selon ses méridiens). Les deux rayons de courbure sont égaux en tout point à  $R$ , d'où le facteur 2 qui apparaît dans l'expression (A1.2). Dans le cas d'un cylindre de rayon  $R$ , les courbures principales valent respectivement  $1/R$  et  $0$ , et la courbure totale  $1/R$ . La traversée d'une interface plane ( $R_1 = R_2 = \infty$ ) se fait sans discontinuité de pression.

## Annexe 2 : Mouillage de certains métaux de transition par le sodium liquide

---

### 1. Fer, cobalt et nickel

Ces métaux font partie du groupe de métaux dont les oxydes sont tous réduits par le sodium. Dans cette partie, l'influence du couple temps-température ainsi que celle de la teneur en oxygène sont étudiés.

Longson et Thorley [Lon67] ont observé qu'une augmentation de la température permet d'améliorer la mouillabilité du nickel et du fer par le sodium liquide mais aussi de diminuer le temps pour atteindre l'angle de contact d'équilibre. Ils ont observé aussi que lorsque la teneur en oxygène augmente, la température de déclenchement du mouillage diminue.

Addison et ses associés [Add56, 62, 65] ont étudié, de façon plus précise, la mouillabilité de ces métaux et celle du molybdène par du sodium. Ils ont utilisé la technique de la plaque verticale. Ils ont observé que, au-delà d'un certain seuil de température, la vitesse à laquelle l'angle de contact diminue jusqu'à zéro augmente avec la température. Il existe ainsi une température caractéristique au-dessus de laquelle l'angle de contact diminue toujours jusqu'à zéro, et au-dessous de laquelle un mouillage complet ne se produit jamais. Cette "température de mouillage critique" est associée à ce groupe de métaux pour lesquels les oxydes ne sont pas stables en milieu sodium pur par rapport à  $\text{Na}_2\text{O}$ , et se réduiront avec une cinétique significative. Au-dessus de cette température, une fois la réduction des oxydes superficiels achevée, la surface de métal de transition propre est complètement mouillée par le sodium. Au-dessous de la température de mouillage critique aucune réaction ne se produit, peut-être à cause d'une cinétique de réduction trop lente, et les angles de contact observés sont typiques d'un oxyde de métal en contact avec du sodium liquide [Bra61]. Les valeurs de température de mouillage critique obtenues par Addison *et al.* [Add62] pour le fer, le cobalt et le nickel sont respectivement 140°C, 190°C, et 195°C. Ces métaux fournissent ainsi l'exemple de la corrélation la plus simple et la plus directe entre mouillage et réaction de surface [Add84]. Smirnov [Smi71] suppose que cette réaction de surface entre le film d'oxydes et le sodium liquide se produit suivant l'équation :



où Me est le métal de transition pur solide. Au fur et à mesure du déroulement de la réaction chimique entre le sodium liquide et le film d'oxydes, l'épaisseur du film diminue, ce qui induit une variation de la tension interfaciale et par conséquent une variation de l'angle de contact.

Ainsi, le fer apparaît comme un matériau permettant d'obtenir le mouillage à une température inférieure ou égale à 180°C (température du sodium lors des contrôles périodiques) et d'autant plus que la concentration en oxygène est importante. Ce comportement du fer pourrait être mis à profit en revêtant le diaphragme des TUSHT d'une couche de fer et en agissant localement sur la concentration en oxygène du sodium proche du capteur lorsqu'il est immergé en réacteur.

## 2. Le chrome

Ce métal est particulièrement intéressant, puisqu'il appartient au groupe des métaux (chrome, molybdène, tungstène, etc.) qui forment des oxydes ternaires stables en sodium [Add84], bien qu'il ait des caractéristiques de mouillage typiques de ces métaux dont les oxydes sont réduits en métal par le sodium (comme le fer, le cobalt, le nickel). Par ailleurs, le chrome est considéré comme le constituant des aciers inoxydables le plus influent vis-à-vis du mouillage de ces aciers [Rou75, Add84].

### 2.1. Résultats expérimentaux

Le mouillage du chrome n'a malheureusement pas été très étudié, en grande partie à cause de la difficulté de fabriquer des plaques fines de métal pur. L'existence d'une température de mouillage critique du chrome n'a pas été prouvée. Selon Addison [Add84], si celle-ci existe, elle est sensiblement supérieure à 160°C. Longson et Thorley [Lon67] observent par exemple que le chrome n'est pas complètement mouillé par du sodium pur pour des températures ne dépassant pas 230°C.

Rousseau et Riggi [Rou75] ont observé que le sodium propre (concentration en oxygène inférieure à 5 ppm) commence à mouiller le chrome à partir de 460°C pour le mouiller parfaitement à partir de 500°C, ceci en respectant des temps de mouillage de 3 ou 4 jours. Ils ont en outre constaté que, sur une durée de plusieurs dizaines d'heures, le chrome n'est jamais mouillé par du sodium à 410°C.

Hodkin et Nicholas [Hod76] ont observé le comportement de mouillage du chrome par la méthode de la goutte sessile. La figure A2.1 montre l'existence d'un palier : l'angle de contact reste constant jusqu'à un seuil de température où l'angle diminue brutalement. Ce changement brutal de comportement peut traduire le passage d'un état où des poches de gaz microscopiques sont piégées sous la goutte, à un état où le sodium liquide épouse parfaitement la rugosité de la surface. La dernière phase des courbes où une diminution plus douce et quasi linéaire de l'angle de contact avec la température est observée, pourrait simplement traduire l'influence de la température sur la réaction de surface entre le film d'oxydes et le sodium liquide.

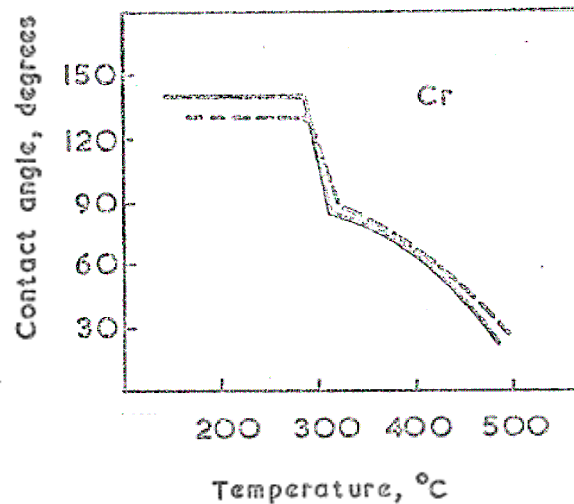


Figure A2.1 : Effet de la température sur le mouillage du chrome. [Hod76]

Hodkin et Nicholas [Hod76] ont observé que le chrome est plus facilement mouillé dans des temps courts que le nickel et le fer, ce qui à première vue n'est ni en accord avec les résultats de [Add84] ni avec ceux de [Rou75]. Cependant, la rugosité et l'épaisseur du film d'oxydes des échantillons utilisés ainsi que la teneur en oxygène du sodium ne sont pas identiques d'une expérience à l'autre. Des comparaisons entre les expériences ne peuvent donc être faites que d'un point de vue qualitatif. Ensuite, il faut bien comprendre que le comportement de mouillage sur des temps courts n'est qu'une indication du comportement de mouillage d'un matériau et doit être complétée par des mesures de température de mouillage critique pour connaître l'évolution du mouillage sur des temps plus longs. Ainsi, les données de ces trois expériences ne sont pas forcément contradictoires. Si toutes ces données sont supposées exactes, cela signifie que le chrome est mouillé dans des temps courts à une température plus basse (310°C [Hod76]) que le fer (345°C [Hod76]) et le nickel (460 ou

470°C [Hod76]). En revanche, sur des temps plus longs, le fer et le nickel peuvent être mouillés à des températures relativement faibles puisqu'ils peuvent être complètement mouillés à des températures critiques de 140°C et 195°C respectivement [Add84]. Tandis que le chrome ne pourrait pas l'être, soit parce que la réaction de surface ne pourrait être possible d'un point de vue thermodynamique qu'à partir de 310°C, soit parce que sa cinétique serait beaucoup trop lente à des températures inférieures à 310°C.

Par ailleurs, il a été observé que la mouillabilité du nickel est très sensible à la teneur en oxygène du sodium et qu'elle s'améliore lorsque la concentration en oxygène augmente. Ce ne serait pas le cas, voire ce serait plutôt l'inverse pour le chrome comme il sera vu plus loin. Ainsi, si les différentes expériences de mouillage, dont les techniques de mesures sont différentes, utilisent du sodium dont la teneur en oxygène est différente d'une expérience à l'autre, les résultats ne peuvent être comparés de façon rigoureuse.

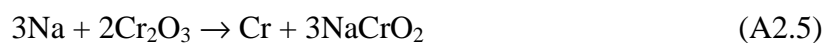
## **2.2. Application de la thermodynamique chimique pour interpréter le mouillage du chrome par le sodium.**

### **2.2.1. Les réactions chimiques mises en jeu**

Il existe trois oxydes de chrome différents :  $\text{CrO}_3$ ,  $\text{CrO}_2$  et  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ . La chimie du système Na–Cr–O est dominée par l'oxyde ternaire  $\text{NaCrO}_2$  (chromite de sodium). Un autre composé est formé en présence de grande quantité d'oxygène (comme dans la réaction à l'état solide entre le métal de chrome et l'oxyde de sodium), mais ce composé se dissocie pour donner  $\text{NaCrO}_2$  dans un excès de sodium liquide [Bar75]. Tous les oxydes de chrome produisent de la chromite quand ils sont ajoutés au sodium liquide, en excès, selon les réactions [Bar76] :



Des trois oxydes binaires du chrome, le plus stable est  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  [Vui76]. Il a notamment été identifié sur la surface du chrome par Gulbransen et Andrew [Gul52]. C'est pourquoi Addison [Add84] considère que la réaction prédominante qui se produit lorsqu'un échantillon de chrome est immergé en sodium est la première des trois réactions précédentes, à savoir :



Celle-ci produit l'oxyde ternaire très stable  $\text{NaCrO}_2$ , et le chrome métal qui, selon Addison, explique le comportement de mouillage du chrome par le sodium, observé expérimentalement.

Vuillerme [Vui76] considère plutôt que  $\text{NaCrO}_2$  est obtenue par réaction de l'oxyde de chrome  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  avec le monoxyde de sodium  $\text{Na}_2\text{O}$  selon la réaction :



L'interprétation de Rousseau et Riggi [Rou75] est, elle aussi, différente. Leur raisonnement s'appuie tout d'abord sur des données de Wu et Chiotti [Wu73]. Ces derniers donnent des valeurs pour plusieurs températures de l'enthalpie libre de formation de  $\text{Na}_2\text{O}$ , de l'enthalpie libre de formation de  $\text{NaCrO}_2$  et des valeurs de la concentration en oxygène du sodium telles que l'enthalpie libre de formation de  $\text{Na}_2\text{O}$  soit égale à celle de  $\text{NaCrO}_2$  (voir tableau A2.1). En effet, l'enthalpie libre de formation de  $\text{Na}_2\text{O}$  dépend de la pureté en oxygène du sodium. Il s'agit en fait de la variation du coefficient d'activité de l'oxygène dans le sodium avec la température. La teneur en oxygène dissous du sodium aurait une importance fondamentale quant à la détermination des réactions qui peuvent apparaître entre le sodium et la surface métallique.

T (en °C)	300	400	500	600	700	800
Enthalpie libre de formation de $\text{Na}_2\text{O}$ dans un sodium saturé en O – $\Delta G$ (en kcal/at.gr.d'O <sub>2</sub> )	80,3	76,8	73,4	69,9	66,4	63
Concentration de saturation en O du sodium (en wppm)	110	600	2100	5400	11500	21400
Enthalpie libre de formation de $\text{NaCrO}_2$ – $\Delta G$ (en kcal/at.gr.d'O <sub>2</sub> )	88,4	86,1	83,9	81,7	79,5	77,2
Concentration en O du sodium (en wppm) telle que – $\Delta G <\text{Na}_2\text{O}> = -\Delta G <\text{NaCrO}_2>$	0,1	0,6	2,2	6,2	14,1	20,3

*Tableau A2.1 : Valeurs de l'enthalpie libre de formation de  $\text{Na}_2\text{O}$ , de la concentration en oxygène du sodium, de l'enthalpie libre de formation de  $\text{NaCrO}_2$  et des valeurs de la concentration en oxygène du sodium telles que l'enthalpie libre de formation de  $\text{Na}_2\text{O}$  soit égale à celle de  $\text{NaCrO}_2$  pour plusieurs températures. [Rou75]*

Comme l'illustre la figure A2.2, les points dénommés A, B, C, D, E, F qui se trouvent à l'intersection de la courbe  $\Delta G(\text{NaCrO}_2)$  et  $\Delta G(\text{Na}_2\text{O})$  paramétrée par la teneur en oxygène correspondent aux valeurs critiques, c'est-à-dire minimales, de teneur en oxygène du sodium pour la formation de  $\text{NaCrO}_2$  à une température donnée.



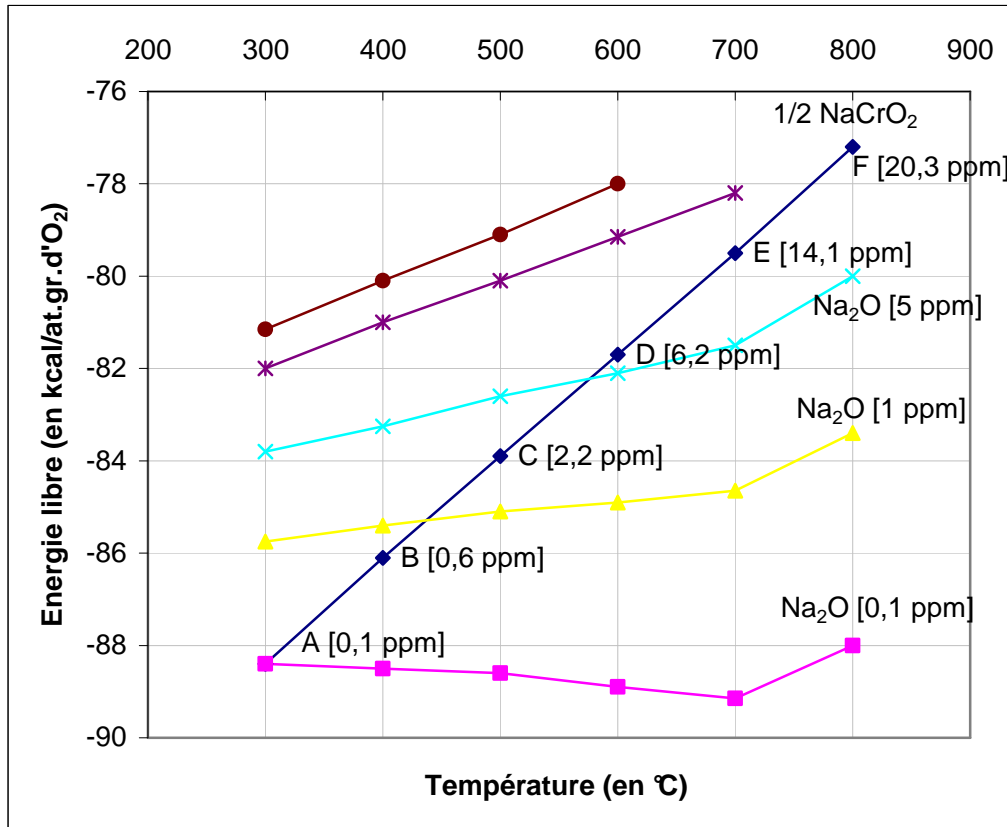
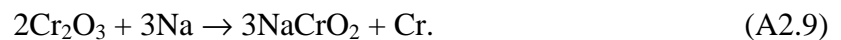


Figure A2.2 : Diagramme d'Ellingham de l'enthalpie libre de formation de  $\text{Na}_2\text{O}$  (pour diverses teneurs en oxygène dissous dans le sodium) et  $\text{NaCrO}_2$  en fonction de la température. [Rou75]

Rousseau et Riggi supposent que, lorsque des pièces chromées sont plongées dans le sodium liquide, deux réactions sont possibles :



Cette réaction non équilibrée correspond en fait à :



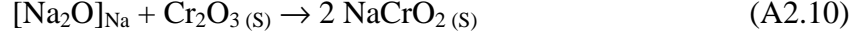
Ils ajoutent que le produit formé est celui qui est le plus stable. En se reportant au diagramme de la figure A2.2, avec du sodium contenant 1 ppm d'oxygène, il est constaté que :

- Au-dessous de 440°C, c'est la chromite  $\text{NaCrO}_2$  qui se forme,
- Au-dessus de 440°C, l'oxygène de la surface est simplement transféré au sodium,

En outre, un taux d'environ 1,2 ppm d'oxygène déplace cette frontière à 460°C. Rousseau et Riggi suggèrent alors l'idée suivante : le mouillage du chrome est lié directement à l'absence d'apparition de la chromite.

### 2.2.2. Calculs thermodynamiques

- Réaction du film d'oxydes à la surface d'un échantillon solide de chrome avec l'oxygène dissous dans le sodium donnant de la chromite de sodium :



Les enthalpies libres de formation des différents composés sont :

$$\Delta_f G^\circ < \text{Na}_2\text{O} > = -421530 + 141,41 \times T \text{ J/mol d'O [Raj95]}$$

$$\begin{aligned} \Delta_f G^\circ < \text{Cr}_2\text{O}_3 > &= -755410 + 171,8 \times T \text{ J/mol de O}_2 \text{ [Cou03]} \\ &= -1133115 + 257,7 \times T \text{ J/mol d'O} \end{aligned}$$

$$\Delta_f G^\circ < \text{NaCrO}_2 > = -913762,8 + 237,24 \times T \text{ J/mol d'O [Raj95]}$$

D'où :  $\Delta_r G^\circ = -272881 + 75,37 \times T \text{ J/mol d'O}$  (la température qui annule  $\Delta_r G^\circ$  est de 2420 K). L'enthalpie libre de la réaction est donnée par :

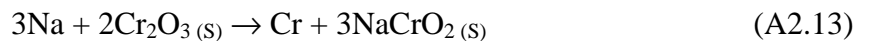
$$\Delta_r G^0 = -RT \ln \frac{a_{\text{NaCrO}_2}^2}{a_{\text{Na}_2\text{O}} \times a_{\text{Cr}_2\text{O}_3}} \quad (\text{A2.11})$$

avec  $a_{\text{NaCrO}_2} = 1$ ,  $a_{\text{Na}_2\text{O}} = a_0$ , et  $a_{\text{Cr}_2\text{O}_3} = 1$ , d'après la loi de Henry et en supposant un liquide idéal pour les faibles concentrations en O. D'où :  $\Delta_r G^\circ = RT \ln a_0$  avec  $a_0 = C_0 / C_0^{\text{sat}}$ .  $C_0^{\text{sat}}$  est donné par la loi de Noden :

$$\log C_0^{\text{sat}} = 6,2571 - 2444,5 / T \quad (\text{A2.12})$$

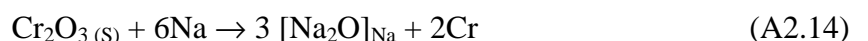
avec  $T$  en K. Finalement :  $\ln C_0 = 23,47 - 38450,5 / T$  avec  $T$  en K. Ce qui donne  $C_0 \approx 0$  wppm quelque soit la température comprise entre 100 et 1000°C. Ainsi, pour cette réaction  $\text{NaCrO}_2$  se forme quelles que soient la température et la teneur en oxygène du sodium.

- Réaction du film d'oxydes à la surface d'un échantillon solide de chrome avec le sodium donnant de la chromite et du chrome :



En reprenant les valeurs d'enthalpies libres utilisées dans la réaction précédente :  $\Delta_r G^\circ = -475058 + 196,32 \times T \text{ J/mol d'O}$ . Ainsi, pour cette réaction  $\text{NaCrO}_2$  se forme quelle que soit la température comprise entre 100 et 1000°C (puisque la température qui annule  $\Delta_r G^\circ$  est de 2420K).

- Réaction du film d'oxydes à la surface d'un échantillon solide de chrome avec le sodium donnant du monoxyde de sodium et du chrome :



En reprenant les valeurs d'enthalpies libres utilisées dans la première réaction :  $\Delta_r G^\circ = -131475 + 166,53 \times T \text{ J/mol d'O}$  pour du sodium saturé en oxygène (la température annulant  $\Delta_r G^\circ$  étant 790K). En utilisant l'expression du potentiel d'oxygène donnée par Lindemer *et al.* [Lin81] :

$$\overline{\Delta G_{O_2}} (\text{J/mol}) = -740\,600 + 21,02T + 38,29T \log[\text{O}] (\text{wppm}) \quad (\text{A2.15})$$

L'enthalpie libre de formation de  $\text{Na}_2\text{O}$  dans le sodium en fonction de sa température et de sa concentration en oxygène est alors :

$$\Delta_f G^\circ < \text{Na}_2\text{O} > = -370300 + 10,51 \times T + 19,15 \times T \times \log[\text{O}] \text{ J/mol d'O} \quad (\text{A2.16})$$

Ce qui permet, à partir de la figure A2.3, de constater que l'enthalpie de la réaction est négative quelque soit la température pour des concentrations en oxygène dissous dans le sodium jusqu'à au moins 100 ppm.

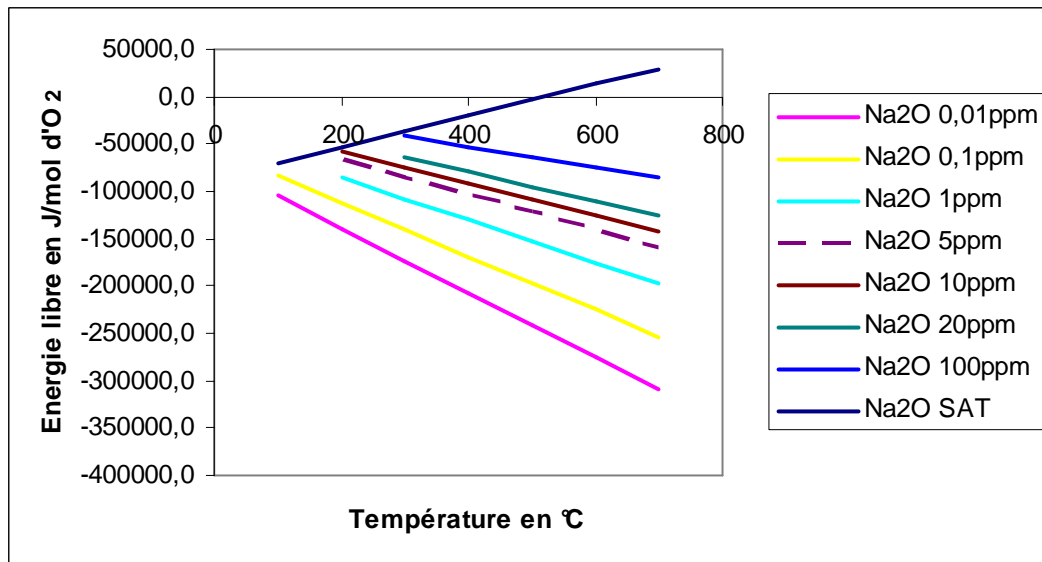


Figure A2.3 : Enthalpie de la réaction  $\text{Cr}_2\text{O}_3(\text{s}) + 6\text{Na} \rightarrow 3 [\text{Na}_2\text{O}]_{\text{Na}} + 2\text{Cr}$  en fonction de la température et pour diverses teneurs en oxygène du sodium.

### 2.2.3. Analyse

Les calculs thermodynamiques précédents montrent, en utilisant des données plus récentes sur les valeurs des enthalpies libres des différents réactifs et produits, que les deux réactions proposées par Rousseau et Riggi sont thermodynamiquement possibles. Toutefois, la simple comparaison des enthalpies libre de formation de  $\text{NaCrO}_2$  et  $\text{Na}_2\text{O}$  n'est peut-être pas suffisante pour justifier leur interprétation. Par ailleurs, cette interprétation repose sur de grosses incertitudes quant aux valeurs des enthalpies de formation des divers composés et

notamment concernant celle de la chromite. Par exemple, la figure A2.4 montre que l'utilisation de données plus récentes pour l'enthalpie libre de formation de  $\text{NaCrO}_2$  ([Raj95]) et de  $\text{Na}_2\text{O}$  ([Lin81] et loi de Noden) déplace le seuil critique pour du sodium contenant 1 ppm d'oxygène à plus de  $460^\circ\text{C}$ . Si simplement les données plus récentes pour  $\text{Na}_2\text{O}$  sont utilisées et celles de Rousseau et Riggi pour  $\text{NaCrO}_2$  conservées, le seuil critique à 1ppm est déplacé à  $380^\circ\text{C}$ .

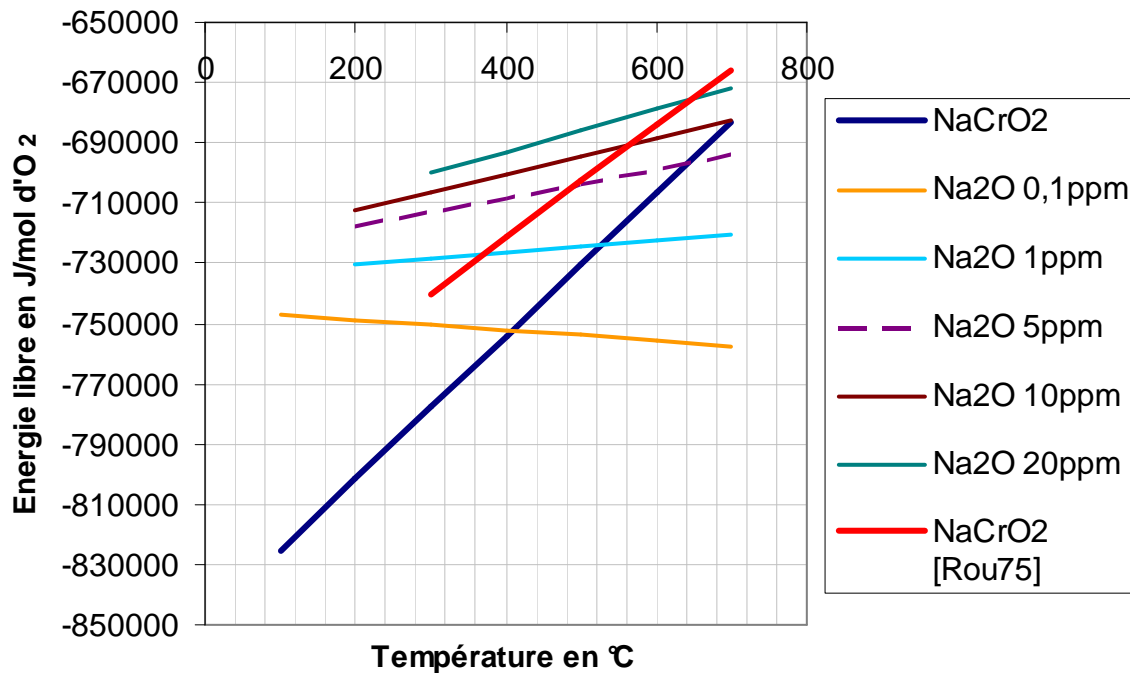
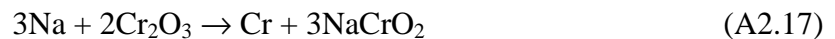


Figure A2.4 : Diagramme d'Ellingham de l'enthalpie libre de formation de  $\text{Na}_2\text{O}$  (pour diverses teneurs en oxygène dissous dans le sodium) et  $\text{NaCrO}_2$  en fonction de la température.

### 2.3. Conclusion

Addison [Add84] considère que la réaction prédominante qui se produit lorsqu'un échantillon de chrome est immergé en sodium est la suivante :



Celle-ci produit l'oxyde ternaire très stable  $\text{NaCrO}_2$ , et le chrome métal. Addison pense que  $\text{NaCrO}_2$  se forme quelle que soit la teneur en oxygène du sodium et que c'est la réaction conduisant à sa formation qui induirait un changement de comportement de mouillage du chrome. En effet, sa formation impliquerait aussi la formation du chrome métal, via la réaction précédente, qui serait à l'origine de l'amélioration de la mouillabilité.

Par ailleurs, il est montré au § 2.2.2 que, quelle que soit la température, cette réaction est thermodynamiquement possible. Il faudrait alors poursuivre l'analyse en étudiant la

cinétique de cette réaction. Si le raisonnement d'Addison est supposé valide, les résultats expérimentaux indiquent que la cinétique de cette réaction devient significative seulement à partir d'un certain seuil en température (autour de 300°C pour Hodkin et Nicholas [Hod76] et autour de 460°C pour Rousseau et Riggi [Rou75]).

Vuillerme [Vui76] considère plutôt que  $\text{NaCrO}_2$  est obtenue par réaction de l'oxyde de chrome  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  avec le monoxyde de sodium  $\text{Na}_2\text{O}$  selon la réaction :

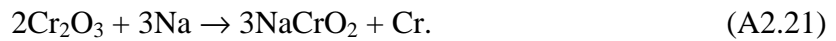


Les calculs thermodynamiques du § 2.2.2 montrent que, suivant cette réaction,  $\text{NaCrO}_2$  se forme quelles que soient la température et la teneur en oxygène du sodium. Il semble donc que cette réaction ne permette pas d'interpréter correctement le comportement de mouillage du chrome révélé par les résultats expérimentaux présentés au paragraphe précédent. Ceci est d'autant plus vrai que statistiquement, la probabilité de rencontre de  $\text{Na}_2\text{O}$  avec la surface est faible puisque à faible concentration en oxygène, l'oxygène est presque infiniment dilué.

Rousseau et Riggi [Rou75], quant à eux, supposent que, lorsque des pièces chromées sont plongées dans le sodium liquide, deux réactions sont possibles :



Cette dernière réaction non équilibrée correspond en fait à :



Ils ajoutent que le produit formé est celui qui est le plus stable.

En conclusion, le manque d'informations expérimentales sur le mouillage du chrome par le sodium ne permet pas de conclure quant au choix de l'interprétation entre celle d'Addison et celle de Rousseau et Riggi. Dans les deux cas, la chromite  $\text{NaCrO}_2$  joue un rôle essentiel pour expliquer le comportement de mouillage mais la différence fondamentale entre les deux est l'influence de la teneur en oxygène du sodium.

## Annexe 3 : Modélisation de la mesure

### 1. Chaînes de mesure

La figure A3.1 représente de façon schématique les chaînes de mesures utilisées dans l'expérience. Les chaînes correspondent soit à une mesure en transmission, effectuée dans le sens où le traducteur A est l'émetteur et le traducteur B le récepteur (Fig. A3.1(a)), ou dans le sens où le traducteur B est l'émetteur et le traducteur A le récepteur (Fig. A3.1(b)) soit à une mesure en réflexion avec comme émetteur le traducteur A (Fig. A3.1(c)). L'ensemble de chaque chaîne de mesure est utilisée dans sa plage de fonctionnement normale. Elle est considérée comme linéaire.

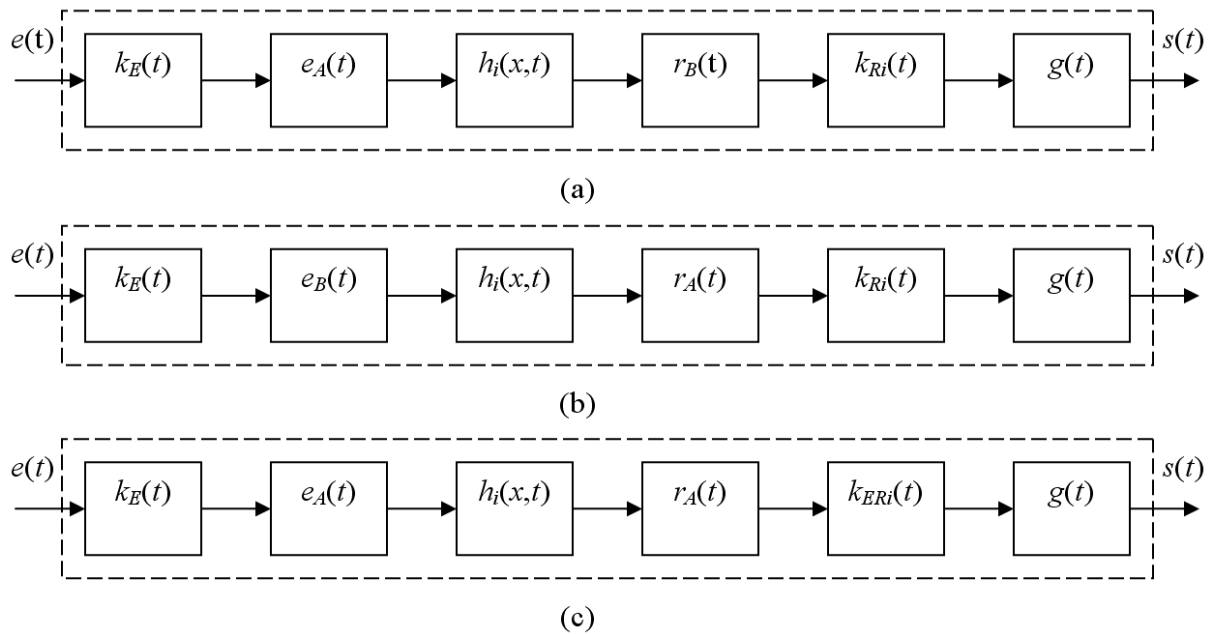


Figure A3.1 : Chaînes de mesure de l'expérience, en transmission dans le sens A vers B (a), en transmission dans le sens B vers A (b), et en réflexion avec A comme émetteur (c).

- où :
- l'indice "i" désigne l'un des deux cas : avec l'échantillon de référence ou avec l'échantillon gravé hydrophobe,
  - $e(t)$  est l'impulsion initiale,

- $k_E(t)$  est la réponse impulsionnelle en émission associée au générateur/récepteur d'impulsions Sofranel 5052PR (dépend du niveau d'énergie choisi),
- $k_{Ri}(t)$  est la réponse impulsionnelle en réception associée au générateur/récepteur d'impulsions Sofranel 5055PR (dépend du gain choisi),
- $k_{ERi}(t)$  est la réponse impulsionnelle en réception associée au générateur/récepteur d'impulsions Sofranel 5052PR (dépend du gain choisi),
- $e_A(t)$  est la réponse impulsionnelle associée au traducteur A en émission,
- $e_B(t)$  est la réponse impulsionnelle associée au traducteur B en émission,
- $r_A(t)$  est la réponse impulsionnelle associée au traducteur A en réception,
- $r_B(t)$  est la réponse impulsionnelle associée au traducteur B en réception,
- $h_i(x,t)$  est la réponse impulsionnelle associée à la propagation de l'onde dans le milieu et sur une distance  $x$ ,
- $g(t)$  est la réponse impulsionnelle associée à l'oscilloscope
- $s(t)$  est le signal acquis.

Cette représentation fait apparaître le milieu exploré ( $h(x,t)$ ), les appareils utilisés ( $k_E(t)$ ,  $k_R(t)$ ,  $e_A(t)$ ,  $e_B(t)$ ,  $r_A(t)$ ,  $g(t)$ ) mais ne définit pas explicitement les différents câblages. Leurs effets sont inclus dans la réponse impulsionnelle du générateur/récepteur 5052PR pour les câblages amont et dans celle du générateur/récepteur 5055PR pour les câblages aval au milieu d'étude.

Dans le domaine temporel, il vient :

- en transmission, dans le sens A vers B :

$$s(t) = g(t) * k_{Ri}(t) * r_B(t) * h(x,t) * e_A(t) * k_E(t) * e(t) \quad (A3.1)$$

- en transmission, dans le sens B vers A :

$$s(t) = g(t) * k_{Ri}(t) * r_A(t) * h(x,t) * e_B(t) * k_E(t) * e(t) \quad (A3.2)$$

- en réflexion avec comme émetteur le traducteur A :

$$s(t) = g(t) * k_{ERi}(t) * r_A(t) * h(x,t) * e_A(t) * k_E(t) * e(t) \quad (A3.3)$$

Les mesures à réaliser portent sur des variables dépendant de la fréquence et résultent d'équations exprimées dans le domaine fréquentiel. Par la suite, les variables sont exprimées directement dans le domaine fréquentiel. Par transformée de Fourier, on obtient :

- en transmission, dans le sens A vers B :

$$S(f) = G(f).K_{Ri}(f).R_B(f).H(x,f).E_A(f).K_E(f).E(f) \quad (A3.4)$$

- en transmission, dans le sens B vers A :

$$S(f) = G(f).K_{Ri}(f).R_A(f).H(x,f).E_B(f).K_E(f).E(f) \quad (A3.5)$$

- en réflexion avec comme émetteur le traducteur A :

$$S(f) = G(f).K_{ERi}(f).R_A(f).H(x,f).E_A(f).K_E(f).E(f) \quad (A3.6)$$

$S(f)$  est le signal fréquentiel obtenu par la mesure. Les paragraphes suivants permettent de définir plus précisément ce signal et la manière d'obtenir les coefficients de transmission et réflexion pour les deux types d'interface : lisse (échantillon de référence) et rugueuse composite (échantillons gravés hydrophobes).

## 2. Echantillon de référence

La figure A3.2 représente les trajets des signaux ultrasonores pour la méthode de mesure du coefficient de réflexion d'une interface lisse. L'onde se propage dans l'eau sur les distances  $d_A$  et  $d_B$  et dans l'échantillon sur une distance  $L$ . La propagation de l'onde dans ce milieu complexe,  $H(d_A + d_B + L, f)$ , est modélisée par la prise en compte d'une onde plane monochromatique se propageant dans deux milieux ( $e^{ik_L(f)(d_A+d_B)}.e^{ik_s(f)L}$ ), des coefficients de transmission et réflexion en pression aux interfaces ( $t_{LS}^l(f), t_{SL}^l(f), r_{LS}^l(f), r_{SL}^l(f)$ ). Les effets de diffraction du faisceau dans les milieux de propagation traversés sont supposés négligeables.

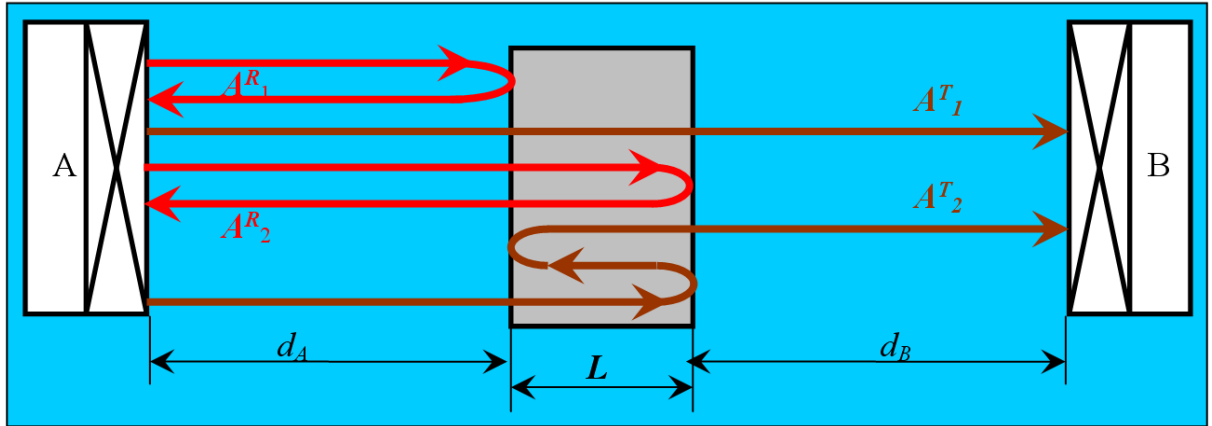


Figure A3.2 : Trajets des signaux ultrasonores pour la méthode de mesure du coefficient de réflexion.

L'eau est un milieu peu atténuant et peu dispersif. Comme les distances de parcours dans l'eau sont faibles et que la plage de fréquences utilisées est réduite, l'eau est considérée comme un milieu non atténuant et non dispersif :



$$k_L(f) = \frac{2\pi f}{c_L} \quad (\text{A3.7})$$

avec  $c_L$  la vitesse de phase dans l'eau.

Le silicium de l'échantillon est, a priori, atténuant et dispersif :

$$k_S(f) = \frac{2\pi f}{c_S} + i\mu(f) \quad (\text{A3.8})$$

avec  $c_S$  la vitesse de phase dans l'échantillon et  $\mu(f)$  l'atténuation du matériau de l'échantillon.

Les quatre échos acquis exprimés dans le domaine fréquentiel sont :

$$\begin{cases} A_1^T(f) = G(f) \cdot K_{Ri}(f) \cdot R_B(f) \cdot E_A(f) \cdot K_E(f) \cdot E(f) \cdot t_{LS}^l(f) \cdot r_{SL}^l(f) \cdot e^{ik_L(f)(d_A+d_B)} \cdot e^{ik_S(f)L} \\ A_2^T(f) = G(f) \cdot K_{Ri}(f) \cdot R_B(f) \cdot E_A(f) \cdot K_E(f) \cdot E(f) \cdot t_{LS}^l(f) \cdot (r_{SL}^l(f))^2 \cdot t_{SL}^l(f) \cdot e^{ik_L(f)(d_A+d_B)} \cdot e^{ik_S(f)3L} \\ A_1^R(f) = G(f) \cdot K_{ERi}(f) \cdot R_A(f) \cdot E_A(f) \cdot K_E(f) \cdot E(f) \cdot r_{LS}^l(f) \cdot e^{ik_L(f)2d_A} \\ A_2^R(f) = G(f) \cdot K_{ERi}(f) \cdot R_A(f) \cdot E_A(f) \cdot K_E(f) \cdot E(f) \cdot t_{LS}^l(f) \cdot r_{SL}^l(f) \cdot t_{SL}^l(f) \cdot e^{ik_L(f)2d_A} \cdot e^{ik_S(f)2L} \end{cases} \quad (\text{A3.9})$$

A partir du système d'équations (A3.9) et des expressions (A3.7) et (A3.8), le système d'équations en module de la transformée de Fourier est obtenu :

$$\begin{cases} |A_1^T(f)| = |G(f)| \cdot |K_{Ri}(f)| \cdot |R_B(f)| \cdot |E_A(f)| \cdot |K_E(f)| \cdot |E(f)| \cdot |t_{LS}^l(f)| \cdot |r_{SL}^l(f)| \cdot e^{-\mu(f)L} \\ |A_2^T(f)| = |G(f)| \cdot |K_{Ri}(f)| \cdot |R_B(f)| \cdot |E_A(f)| \cdot |K_E(f)| \cdot |E(f)| \cdot |t_{LS}^l(f)| \cdot |r_{SL}^l(f)|^2 \cdot |t_{SL}^l(f)| \cdot e^{-3\mu(f)L} \\ |A_1^R(f)| = |G(f)| \cdot |K_{ERi}(f)| \cdot |R_A(f)| \cdot |E_A(f)| \cdot |K_E(f)| \cdot |E(f)| \cdot |r_{LS}^l(f)| \\ |A_2^R(f)| = |G(f)| \cdot |K_{ERi}(f)| \cdot |R_A(f)| \cdot |E_A(f)| \cdot |K_E(f)| \cdot |E(f)| \cdot |t_{LS}^l(f)| \cdot |r_{SL}^l(f)| \cdot |t_{SL}^l(f)| \cdot e^{-2\mu(f)L} \end{cases} \quad (\text{A3.10})$$

En utilisant les relations  $r_{LS} = -r_{SL}$  et  $t_{LS} = 1 + r_{LS} = 1 - r_{SL}$ , il vient :

$$|r_{SL}(f)| = \sqrt{\frac{1}{1 + \frac{|A_2^R(f)| \cdot |A_1^T(f)|}{|A_1^R(f)| \cdot |A_2^T(f)|}}} \quad (\text{A3.11})$$

### 3. Echantillons gravés hydrophobes

La figure A3.3 représente les trajets des signaux ultrasonores pour la méthode de mesure des coefficients de transmission à l'interface composite des échantillons expérimentaux.

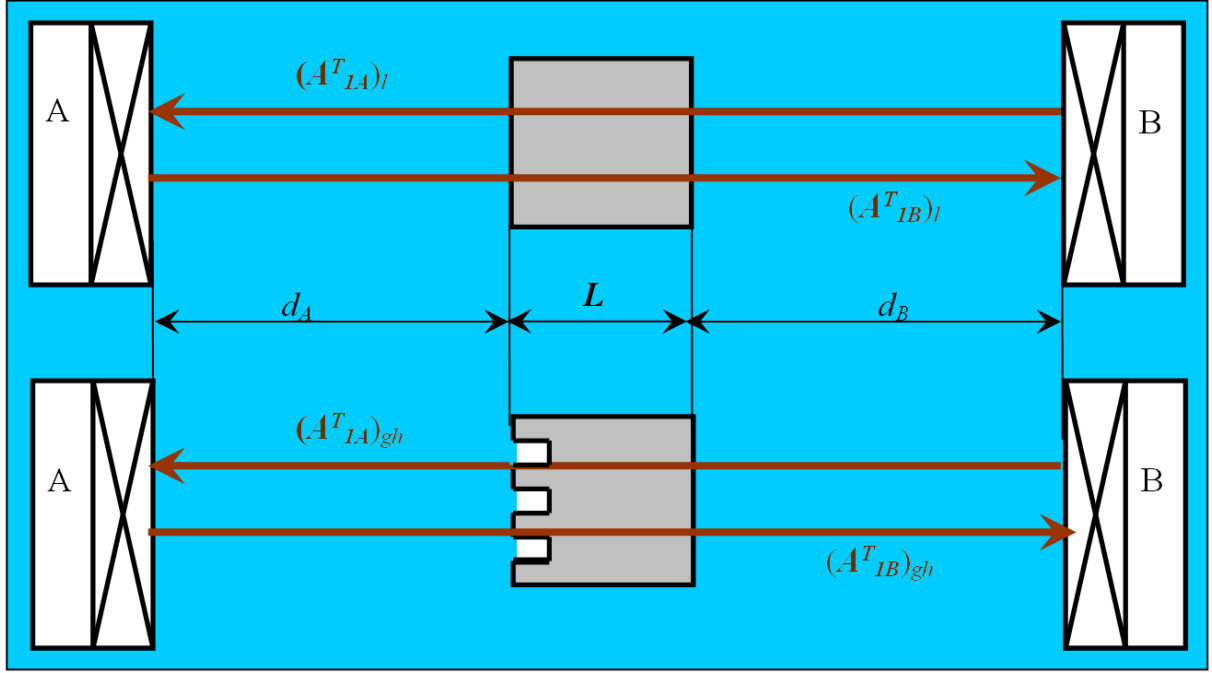


Figure A3.3 : Trajet des signaux ultrasonores pour la méthode de mesure pour les échantillons gravés hydrophobes.

En supposant que les effets de diffraction du faisceau sont négligeables, les deux échos acquis, exprimés dans le domaine fréquentiel, sont donnés par :

$$\begin{cases} (1)_n & (A^T_{IB})_n(f) = G(f) \cdot K_{Ri}(f) \cdot R_B(f) \cdot E_A(f) \cdot K_E(f) \cdot E(f) \cdot t_{LS}^n(f) \cdot t_{SL}^l(f) \cdot e^{ik_L(f)(d_A+d_B)} \cdot e^{ik_s(f)L} \\ (2)_n & (A^T_{IA})_n(f) = G(f) \cdot K_{Ri}(f) \cdot R_A(f) \cdot E_B(f) \cdot K_E(f) \cdot E(f) \cdot t_{LS}^l(f) \cdot t_{SL}^n(f) \cdot e^{ik_L(f)(d_A+d_B)} \cdot e^{ik_s(f)L} \end{cases} \quad (A3.12)$$

avec  $n = l$  qui correspond à l'échantillon de référence lisse, ou  $n = gh$  qui correspond à un échantillon gravé hydrophobe. Il vient :

$$\begin{aligned} \frac{(1)_{gh}}{(1)_l} &\rightarrow |t_{LS}^{gh}(f)| = \frac{|(A^T_{IB})_{gh}(f)|}{|(A^T_{IB})_l(f)|} |t_{LS}^l(f)| \\ \frac{(2)_{gh}}{(2)_l} &\rightarrow |t_{SL}^{gh}(f)| = \frac{|(A^T_{IA})_{gh}(f)|}{|(A^T_{IA})_l(f)|} |t_{SL}^l(f)| \end{aligned} \quad (A3.13)$$





**Résumé :**

Une des voies envisagées pour l'inspection ultrasonore des réacteurs de quatrième génération refroidis par du sodium liquide consiste à utiliser un transducteur immergé dans le sodium. Un bon couplage acoustique du transducteur avec le sodium est nécessaire. Cependant, sans précaution particulière, ce dernier n'est pas forcément obtenu. L'objectif est d'étudier les conditions d'apparition d'un très mauvais couplage acoustique.

Le non mouillage de la surface du transducteur par le sodium peut provoquer le piégeage de poches de gaz dans la rugosité. De plus, l'augmentation de la fraction surfacique de gaz à des interfaces contrôlées se traduit par une chute brutale de la transmission des ultrasons. Une première analyse quasi-statique, basée sur le modèle de la crevasse, permet d'étudier la stabilité de ces poches de gaz vis-à-vis de la température, de la pression hydrostatique, du niveau de saturation en gaz dissous dans le liquide. Une modélisation du comportement dynamique d'une poche de gaz de géométrie simple et une expérience de visualisation en eau montrent que la fraction surfacique de gaz à l'interface n'augmente pas sous l'effet de la pression acoustique. Afin de mener une étude paramétrique en fonction de la taille et la fraction surfacique des poches de gaz, plusieurs échantillons sont réalisés. Une expérience ultrasonore, utilisant différentes fréquences, permet de mesurer la transmission à travers ces échantillons. Parallèlement, divers modèles décrivant la configuration expérimentale sont proposés. La comparaison des résultats expérimentaux et analytiques (du dernier modèle) montrent une évolution similaire de la transmission en fonction des différents paramètres.

**Mots clés :**

Ultrasons – Contrôle Non Destructif – Réacteurs nucléaires – Sodium liquide – Couplage acoustique – Mouillage – Interfaces imparfaites – Rugosité

---

**Contribution to the study of the transmission of ultrasound at a solid – gas – liquid interface.  
Application to non-destructive testing of the fourth generation of liquid sodium cooled reactors.**

**Abstract :**

One of the ways envisaged for the ultrasonic inspection of the fourth generation of liquid sodium cooled reactors is to use a transducer immersed in sodium. A good acoustic coupling of the transducer with sodium is needed. However, without special precautions, it is not obtained in all situations. The goal is to study the conditions for the appearance of a very bad acoustic coupling.

Under certain conditions, the non wetting of the surface of the transducer by sodium causes trapping gas pockets in the roughness. Moreover, increasing amounts of surface gas fraction induces a sharp drop in the transmission of ultrasound. A first quasi-static analysis based on the crevice model allows to study the dependence of the stability of these gas pockets on the temperature, the hydrostatic pressure, and the level of dissolved gas saturation of the liquid. Modelling the dynamic behaviour of a simple gas pocket geometry and conducting an in-water viewing experience show that the gas surface fraction does not increase as a result of sound pressure transducer. In order to develop a parametric study based on the size and gas surface fraction, several samples are made. An ultrasonic experiment using various frequencies can measure the transmission through these samples. Meanwhile, three different models describing the experimental setup are proposed. The comparison of experimental and analytical results (of the last model) show a similar pattern of the dependence of the transmission on the various parameters.

**Keywords :**

Ultrasound – Non-Destructive Testing – Nuclear reactor – Liquid sodium – Acoustic coupling – Wetting – Imperfect interfaces – Roughness

Laboratoire de Caractérisation Non Destructive  
Université de la Méditerranée  
IUT Aix-en-Provence  
Avenue Gaston Berger  
13625 Aix-en-Provence Cedex 1

Commissariat à l'Energie Atomique  
Centre de Cadarache  
DEN/DTN/STPA/LTTS  
Bâtiment 201  
13108 Saint Paul lez Durance Cedex